




CERTIFICATION

This is to certify that Corporate Translations, Inc. has performed a true translation for *Cantor Colburn LLP* of the *Claims for International Patent Document No. WO 1997/11050 (API-0002)* (CTi reference number: LC32760). This document was prepared by a translator who is fully bilingual in both Japanese and English.

Authorized Signature:



Mary C. Gawlicki
President
Corporate Translations, Inc.

May 31, 2005

"Subscribed and sworn to before me

this 31st day of May, 20 05"

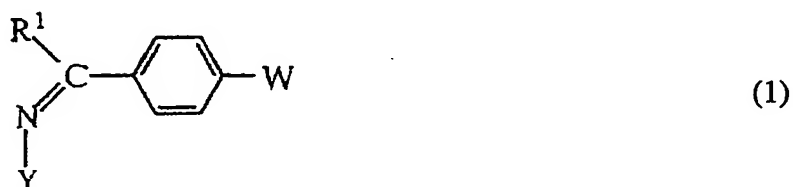


Notary Public

Date Commission Expires: 1-31-09

Claims

1. A benzylidene-hydrazine compound characterized in being represented by the following Formula (1):



where in the formula,

W represents: $-O-Q$; where Q represents a 6-membered ring containing 1–3 nitrogen atoms that is unsubstituted or substituted, having at least one substituent selected from a group consisting of: a halogen atom, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, an alkylthio group containing 1–4 carbon atoms, an alkoxy group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkoxy group containing 1–4 carbon atoms, and an alkylamino group containing 1–8 carbon atoms; or

$-CR^2R^3(XR^4)$; where R^2 represents a hydrogen atom, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms, a cyano group or a halogen atom; R^3 represents a hydrogen atom, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms or a halogen atom; and R^4 represents a hydrogen atom, an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, an alkenyl group containing 2–5 carbon atoms, a cycloalkyl group containing 3–8 carbon atoms, an alkynyl group containing 2–5 carbon atoms, an unsubstituted or substituted phenyl group having a halogen atom or an alkyl group containing 1–4 carbon atoms as a substituent, a benzyl group, a phenethyl group, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkenyl group containing 2–6 carbon atoms, an alkylsulfonyl group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkylsulfonyl group containing 1–4 carbon atoms, a cyano group, A^1COOR^{10} , A^1OR^{10} , COA^1OR^{10} , $CSOR^{10}$ or cyanoalkyl group;

where:

A^1 represents an alkylene group containing 1–4 carbon atoms;

R^{10} represents an alkyl group containing 1–4 carbon atoms; and

when W is $-O-Q$, R^1 represents a phenyl group that is unsubstituted or substituted, having as a substituent: a halogen atom, an alkyl group containing 1-4 carbon atoms or a pyrimidinyl group;

when W is $-CR^2R^3(XR^4)$, $[R^1]$ represents a phenyl group that is unsubstituted or substituted,

having as a substituent: a halogen atom, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, a nitro group, a cyano group, an alkoxy group containing 1–4 carbon atoms, an alkylthio group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkoxy group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkylsulfonyloxy group containing 1–4 carbon atoms or an alkylsulfonyloxy group containing 1–4 carbon atoms; or an alkyl group containing 1–8 carbon atoms or a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms;

when W is $-\text{O}-\text{Q}$, Y represents $-\text{NR}^5\text{R}^6$, where:

R^5 represents a hydrogen atom;

R^6 represents a hydrogen atom, an alkoxycarbonyl group containing 2–5 carbon atoms or an acyl group containing 2–5 carbon atoms; or

R^5 and R^6 together with N may form $-\text{N}=\text{CR}^7\text{NR}^8\text{R}^9$, where

R^7 , R^8 and R^9 each independently represents an alkyl group containing 1–4 carbon atoms;

when W is $-\text{CR}^2\text{R}^3(\text{XR}^4)$, [Y] represents $-\text{NR}^5\text{R}^6$, $-\text{N}=\text{CR}^7\text{NR}^8\text{R}^9$ or $-\text{N}=\text{CR}^7\text{NR}^8\text{R}^9$ where R^7 and R^8 are linked to form a 4–8-membered ring; where:

R^5 represents a hydrogen atom, a formyl group, an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, an alkenyl group containing 2–5 carbon atoms, an alkynyl group containing 2–5 carbon atoms, a cycloalkyl group containing 3–8 carbon atoms, COOR^{11} , COR^{12} , SO_2R^{13} , $\text{SO}_2\text{NHR}^{10}$, $\text{SO}_2\text{NHCH}_2\text{Ph}$, $\text{SO}_2\text{NR}^{10}\text{R}^{10'}$, CONHR^{14} , CSNHR^{15} , $\text{A}^1\text{COOR}^{10}$, $\text{COA}^2\text{R}^{16}$, $\text{CONR}^{10}\text{R}^{10'}$, CSSR^{10} or A^1OR^{10} ;

R^6 represents a hydrogen atom, a formyl group, an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, COOR^{17} , COR^{18} , SO_2R^{13} , $\text{COA}^1\text{R}^{19}$, COCOOR^{10} , $\text{SCR}^{20}\text{R}^{20}\text{R}^{20}$, $\text{SNR}^{21}\text{R}^{21'}$, A^1OR^{21} , $\text{CH}_2\text{OA}^1\text{OR}^{10}$, $\text{SNR}^{10}\text{COOR}^{21}$, $\text{SNR}^{10}\text{A}^1\text{COOR}^{10'}$, A^1SR^{15} or a benzyl group;

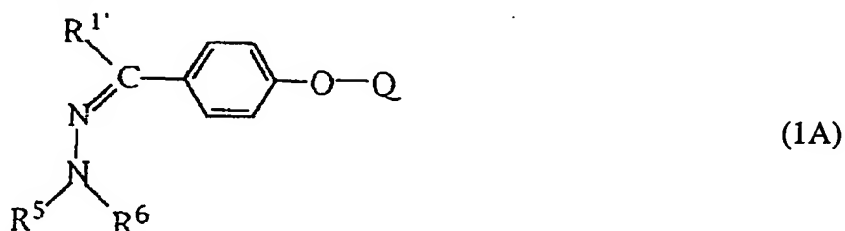
R^5 and R^6 may be linked together with N to form a 4–8-membered ring;

R^7 represents a hydrogen atom, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms or a phenyl group;

- R⁸ represents a hydrogen atom or an alkyl group containing 1–4 carbon atoms;
- R⁹ represents a hydrogen atom, a formyl group, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms, an alkynyl group containing 2–5 carbon atoms, COR¹⁰ or a phenyl group;
- A¹ and R¹⁰ are as defined previously;
- A² represents an alkylene group containing 1–10 carbon atoms;
- Ph represents a phenyl group;
- R¹⁰ represents an alkyl group containing 1–4 carbon atoms;
- R¹¹ represents an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, a phenyl group, a benzyl group or an alkenyl group containing 3–5 carbon atoms;
- R¹² represents an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, a cycloalkyl group containing 3–8 carbon atoms, an unsubstituted or substituted phenyl group having a halogen atom, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms, a hydroxyl group or an alkoxy group containing 1–4 carbon atoms as a substituent, or an unsubstituted or substituted pyridyl group having a halogen atom as a substituent;
- R¹³ represents an alkyl group containing 1–4 carbon atoms or a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms;
- R¹⁴ represents an unsubstituted or substituted phenyl group having a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms as a substituent, an alkyl group containing 1–8 carbon atoms or a phenylsulfonyl group;
- R¹⁵ represents a phenyl group or an alkyl group containing 1–4 carbon atoms;
- R¹⁶ represents an alkyl group containing 1–4 carbon atoms, an alkoxy group containing 1–4 carbon atoms, an alkylthio group containing 1–4 carbon atoms, an alkylcarbonyloxy group containing 2–4 carbon atoms, a halogen atom, an imidazole group, an alkylcarbonylamino group containing 2–5 carbon atoms or a pyridyl group;
- R¹⁷ represents an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, a phenyl group, a benzyl group or an alkenyl group containing 2–5 carbon atoms;
- R¹⁸ represents an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, a cycloalkyl group containing

- 3–8 carbon atoms, a phenyl group, an alkenyl group containing 2–5 carbon atoms or an unsubstituted or substituted pyridyl group having a halogen atom as a substituent;
 R^{19} represents an alkoxy group containing 1–4 carbon atoms, an alkylthio group containing 1–4 carbon atoms or COOR^{10} ;
 R^{20} represents a halogen atom; and
 R^{21} and $R^{21'}$ represent alkyl group containing 1–8 carbon atoms;
X represents S, SO, SO_2 , O or NR^{22} ; where:
 R^{22} represents a hydrogen atom, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms, an alkylcarbonyl group containing 2–5 carbon atoms or a formyl group.

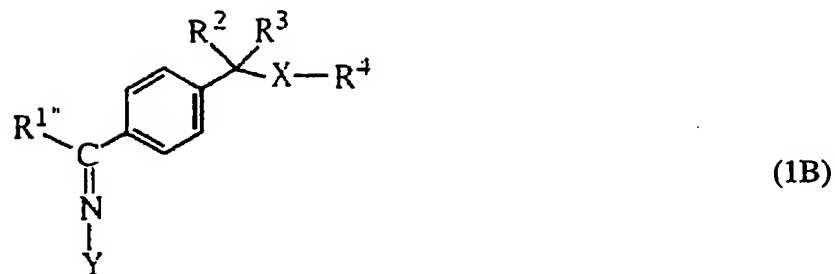
2. A compound according to claim 1 wherein the compound according to Formula (1) is that represented by the following Formula (1A):



where in the formula, $R^{1'}$, R^5 , R^6 and Q are as previously defined.

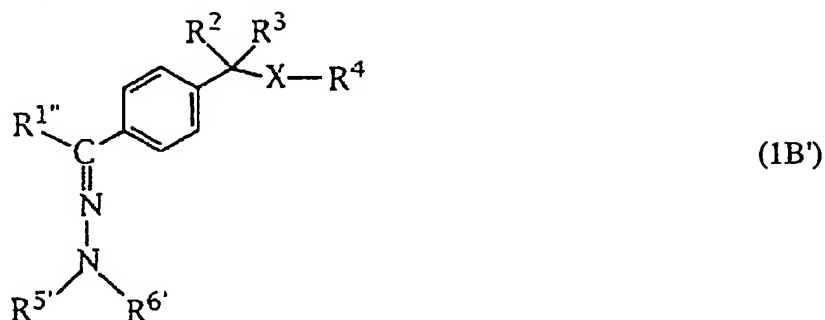
3. A compound according to claim 2 wherein: $R^{1'}$ is a phenyl group or a phenyl group having a halogen atom as a substituent, R^5 is a hydrogen atom and R^6 is an alkoxycarbonyl group containing 2–5 carbon atoms or R^5 and R^6 together with N form $-\text{N}=\text{C}(\text{CH}_3)\text{N}(\text{CH}_3)_3$, Q is a pyrimidinyl group, pyridyl group or triazinyl group.
4. A compound according to claim 1 wherein the compound according to Formula (1) is that represented by the following Formula (1B):

160



where in the formula, $\text{R}^{1''}$, R^2 through R^4 , X and Y are as previously defined.

5. A compound according to claim 4 wherein the compound according to Formula (1B) is that represented by the following Formula (1B'):

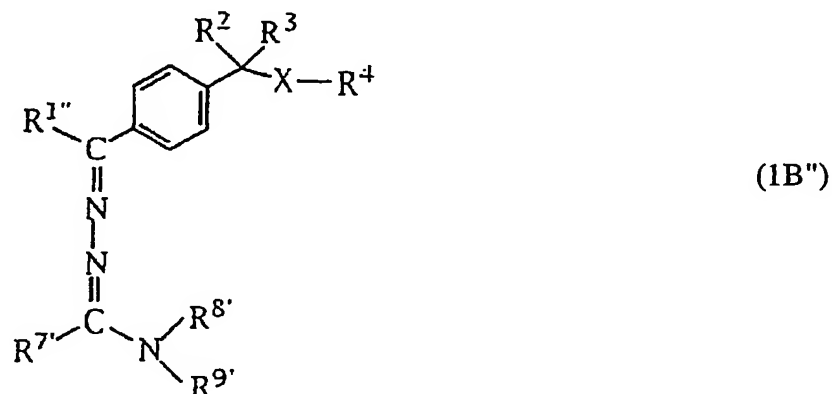


where in the formula, $\text{R}^{1''}$, R^2 through R^4 , $\text{R}^{5'}$ through $\text{R}^{6'}$ and X are as previously defined.

6. A compound according to claim 5 wherein: $\text{R}^{1''}$ is a phenyl group or an alkyl group containing 1–8 carbon atoms; R^2 is a hydrogen atom or an alkyl group containing 1–4 carbon atoms; R^3 is a hydrogen atom or an alkyl group containing 1–4 carbon atoms; R^4 is an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, an alkenyl group containing 2–5 carbon atoms, a cycloalkyl group containing 3–8 carbon atoms, an alkynyl group containing 2–5 carbon atoms, a phenyl group, a benzyl group, a phenethyl group, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkenyl group containing 2–6 carbon atoms, an alkylsulfonyl group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkylsulfonyl group containing 1–4 carbon atoms, a cyano group, $\text{A}^1\text{COOR}^{10}$, a hydrogen atom, A^1OR^{10} , $\text{COA}^1\text{OR}^{10}$, CSOR^{10} or a cyanoalkyl group; $\text{R}^{5'}$ is a hydrogen atom, a formyl group, an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, an alkenyl group containing 2–5 carbon atoms, an alkynyl group containing 2–5 carbon atoms, a cycloalkyl group containing 3–8 carbon atoms, COOR^{11} , COR^{12} , SO_2R^{13} , $\text{SO}_2\text{NHR}^{10}$, $\text{SO}_2\text{NHCH}_2\text{Ph}$, $\text{SO}_2\text{NR}^{10}\text{R}^{10'}$, CONHR^{14} ,

CSNHR¹⁵, A¹COOR¹⁰, COA²R¹⁶, CONR¹⁰R^{10'}, CSSR¹⁰ or A¹OR¹⁰; R^{6'} is a hydrogen atom, a formyl group, an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, COOR¹⁷, COR¹⁸, SO₂R¹³, COA¹R¹⁹, COCOOR¹⁰, SCR²⁰R²⁰R²⁰, SNR²¹R^{21'}, A¹OR²¹, CH₂OA¹OR¹⁰, SNR¹⁰COOR²¹, SNR¹⁰A¹COOR^{10'}, A¹SR¹⁵ or a benzyl group; R^{5'} and R^{6'} may be linked together with N to form a 4–8-membered ring; where A¹, A² and R¹⁰ through R^{21'} are as defined previously; and X is S, SO or SO₂.

7. A compound according to claim 4 wherein the compound according to Formula (1B) is that represented by the following Formula (1B''):



where in the formula, R^{1''}, R² through R⁴, R^{7'} through R^{9'} and X are as previously defined.

8. A compound according to claim 7 wherein: R^{1''} is a phenyl group or a phenyl group having a halogen atom as a substituent; R² is a hydrogen atom or an alkyl group containing 1–4 carbon atoms; R³ is a hydrogen atom or an alkyl group containing 1–4 carbon atoms; R⁴ is an alkyl group containing 1–6 carbon atoms, an alkenyl group containing 2–5 carbon atoms, a cycloalkyl group containing 3–8 carbon atoms, a phenyl group or a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms; R^{5'} is a hydrogen atom, a formyl group, an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, COOR¹¹, COR¹², SO₂R¹³, SO₂NHR¹⁰, SO₂NHCH₂Ph, SO₂NR¹⁰R^{10'}, CONHR¹⁴, CSNHR¹⁵, A¹COOR¹⁰, COA²R¹⁶, CONR¹⁰R^{10'}, CSSR¹⁰ or A¹OR¹⁰; R^{6'} is a hydrogen atom, a

formyl group, an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, COOR^{17} , COR^{18} , SO_2R^{13} , $\text{COA}^1\text{R}^{19}$, COCOOR^{10} , $\text{SCR}^{20}\text{R}^{20}\text{R}^{20}$, $\text{SNR}^{21}\text{R}^{21'}$, A^1OR^{21} , $\text{CH}_2\text{OA}^1\text{OR}^{10}$, $\text{SNR}^{10}\text{COOR}^{21}$, $\text{SNR}^{10}\text{A}^1\text{COOR}^{10'}$, A^1SR^{15} or a benzyl group; where A^1 , A^2 and R^{10} through $\text{R}^{21'}$ are as defined previously; and X is S, SO or SO_2 .

9. A compound represented by the following Formula (2'):



where in the formula, W' represents $-\text{O}-\text{Q}'$ or $-\text{CR}^2\text{R}^3(\text{XR}^{4'})$; and where:

Q' represents a pyrimidinyl group, a pyridyl group having a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms as a substituent or a triazinyl group having an alkoxy group containing 1–4 carbon atoms and an alkylamino group containing 1–8 carbon atoms as substituents;

$\text{R}^{4'}$ is an alkyl group containing 1–8 carbon atoms, an alkenyl group containing 2–5 carbon atoms, a cycloalkyl group containing 3–8 carbon atoms, an alkynyl group containing 2–5 carbon atoms, a phenyl group that is unsubstituted or has a halogen atom or an alkyl group containing 1–4 carbon atoms as a substituent, a benzyl group, a phenethyl group, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkenyl group containing 2–6 carbon atoms, an alkylsulfonyl group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkylsulfonyl group containing 1–4 carbon atoms, a cyano group, $\text{A}^1\text{COOR}^{10}$, A^1OR^{10} , $\text{COA}^1\text{OR}^{10}$, CSOR^{10} or a cyanoalkyl group; and

R^1 through R^3 , R^{10} , A^1 and X are as defined in claim 1.

10. A method for the manufacture of a compound represented by the following Formula (1a):

163



where in the formula, R^1 , Y' and W are as previously defined;
 characterized in comprising the step of reacting a compound represented by the following Formula (2):

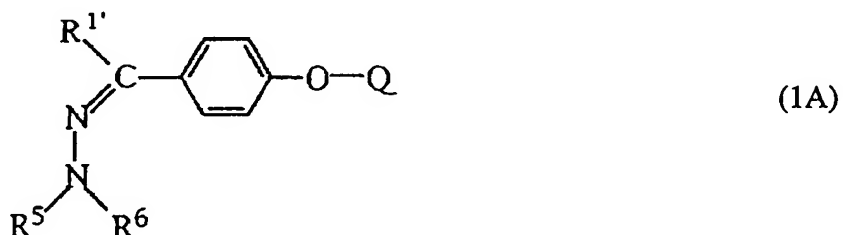


where in the formula, $\text{R}^{1''}$ and W are as defined in claim 1;
 with a compound represented by the following Formula (3):



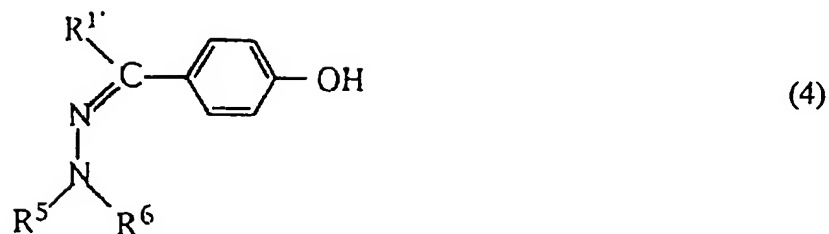
where in the formula, Y' represents $-\text{NR}^5\text{R}^6$ when W is $-\text{O}-\text{Q}$ and $-\text{NR}^5\text{R}^6$ when W is $-\text{CR}^2\text{R}^3(\text{XR}^4)$; and where R^5 , R^6 , R^5 and R^6 are as defined in claim 1.

11. A method for the manufacture of a heterocyclic benzylidene-hydrazine compound represented by the following Formula (1A):



where in the formula, $\text{R}^{1'}$, R^5 , R^6 and Q are as previously defined;
 characterized in comprising the step of reacting a compound represented by the following Formula (4):

164



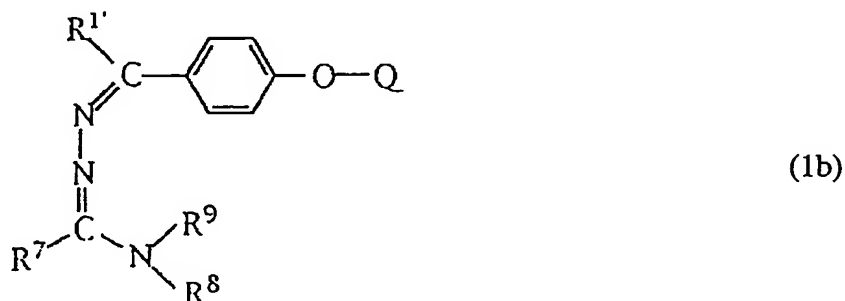
where in the formula, $R^{1'}$ represents a phenyl group that is unsubstituted or substituted, having as a substituent: a halogen atom, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms or a pyrimidinyl group, and R^5 and R^6 are as defined in claim 1;

with a compound represented by the following Formula (5):



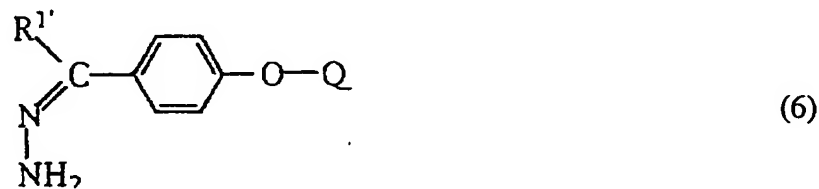
where in the formula, Q is as defined in claim 1; and Z represents a leaving group.

12. A method for the manufacture of a heterocyclic oxybenzylidene-hydrazine compound represented by the following Formula (1b):



where in the formula, $R^{1'}$, R^7 , R^8 , R^9 and Q are as previously defined;

characterized in comprising the step of reacting a compound represented by the following Formula (6):



where in the formula, $R^{1'}$ and Q are as defined in claim 1;

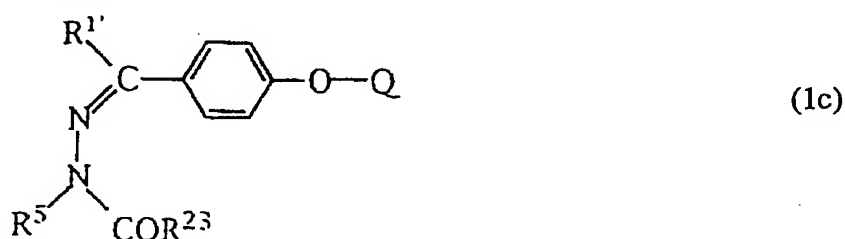
with a compound represented by the following Formula (7):

165



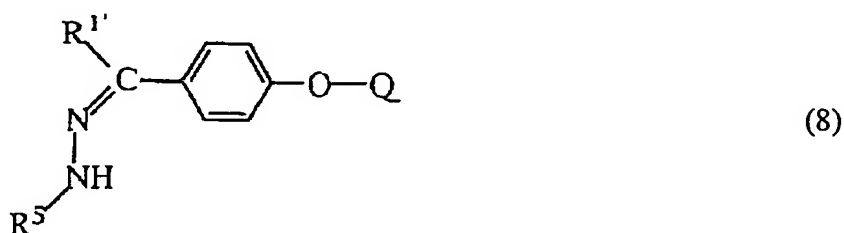
where in the formula, R^7 , R^8 and R^9 are as defined in claim 1.

13. A method for the manufacture of a heterocyclic oxybenzylidene-hydrazine compound represented by the following Formula (1c):



where in the formula, $\text{R}^{1'}$, R^5 , Q and R^{23} are as previously defined;

characterized in comprising the step of reacting a compound represented by the following Formula (8):



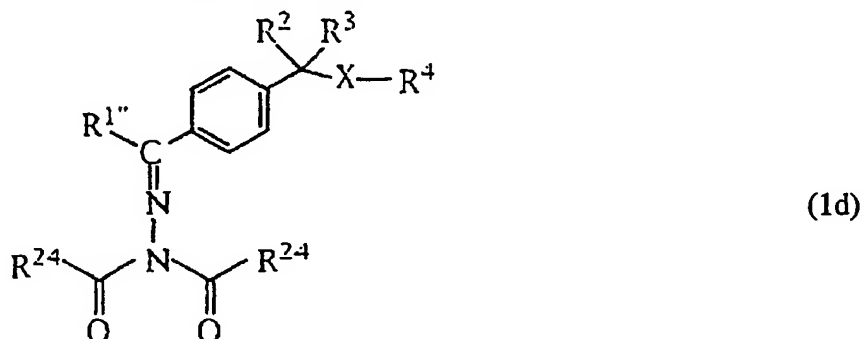
where in the formula, $\text{R}^{1'}$, R^5 and Q are as defined in claim 1;

with a compound represented by the following Formula (9):

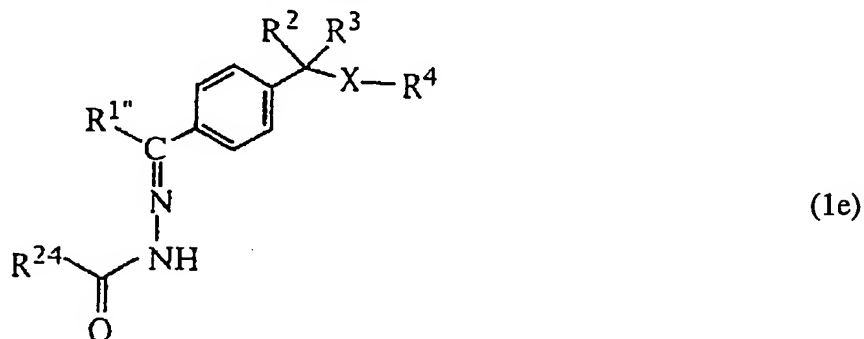


where in the formula, R^{23} represents an alkoxy group containing 1–4 carbon atoms or an alkyl group containing 1–4 carbon atoms; and Z' represents a leaving group.

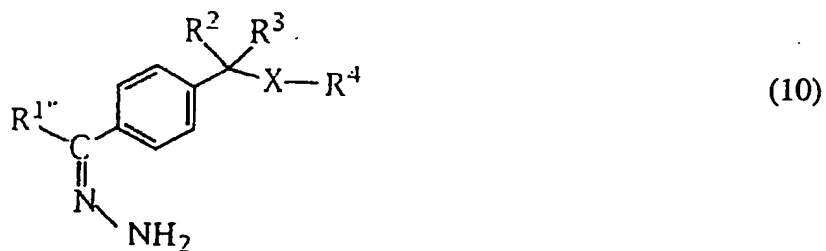
14. A method for the manufacture of a compound represented by the following Formula (1d):



where in the formula, $R^{1''}$ through R^4 , X and R^{24} are as previously defined;) and a compound represented by the following Formula (1e):



where in the formula, $R^{1''}$, R^2 through R^4 , X and R^{24} are as previously defined; characterized in comprising the step of reacting a compound represented by the following Formula (10):



where in the formula, $R^{1'}$ represents a phenyl group that is unsubstituted or substituted, having as a substituent: a halogen atom, an alkyl group containing 1–4 carbon atoms, a haloalkyl group containing 1–4 carbon atoms, a nitro group, a cyano group, an alkoxy group

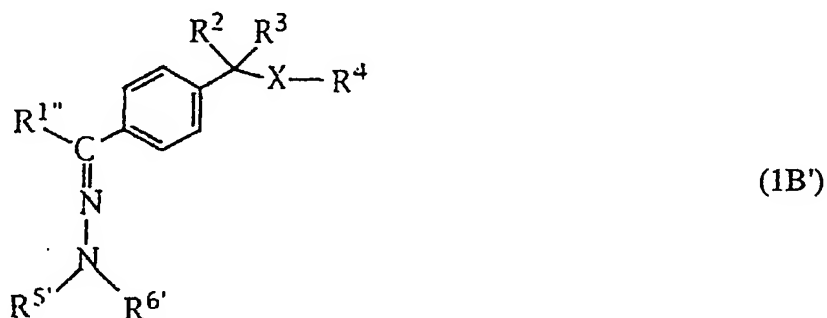
containing 1-4 carbon atoms, an alkylthio group containing 1-4 carbon atoms, a haloalkoxy group containing 1-4 carbon atoms, a haloalkylsulfonyloxy group containing 1-4 carbon atoms or an alkylsulfonyloxy group containing 1-4 carbon atoms; or an alkyl group containing 1-8 carbon atoms or a haloalkyl group containing 1-4 carbon atoms; and R² through R⁴ and X are as defined in claim 1;

with a compound represented by the following Formula (11):

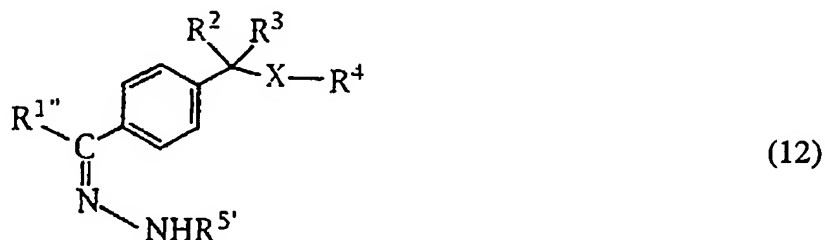


where in the formula, R²⁴ represents R¹⁰, OR¹¹, NHR¹⁴ or NR¹⁰R^{10'}; Z represents a halogen atom, OCOR¹³, OR¹⁰ or OH; note that R¹⁰, R¹¹, R¹³ and R¹⁴ are as defined previously.

15. A method for the manufacture of a compound represented by the following Formula (1B'):



where in the formula, R¹*, R² through R⁴, R⁵ through R⁶ and X are as previously defined; characterized in comprising the step of reacting a compound represented by the following Formula (12):

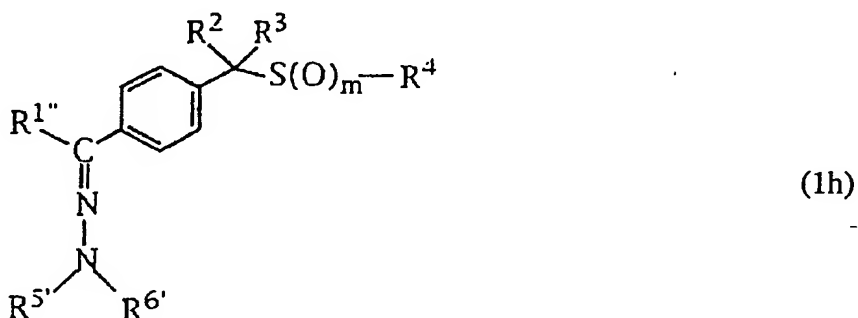


where in the formula, $R^{1''}$, R^2 through R^4 , $R^{5'}$ and X are as defined in claim 1;
with a compound represented by the following Formula (13):



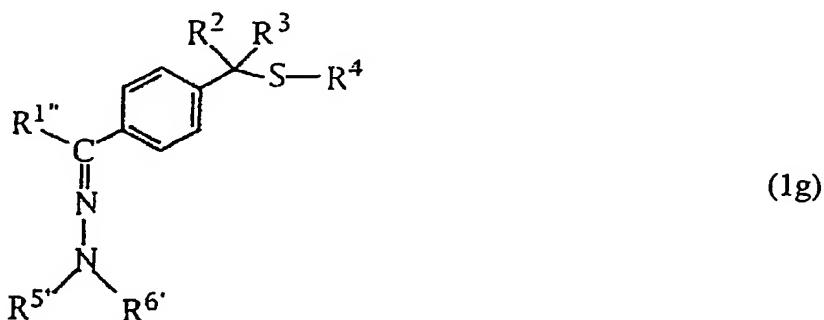
where in the formula, $R^{6'}$ is as defined in claim 1; G represents a halogen atom or $OCOR^{13}$;
where R^{13} is as defined in claim 1.

16. A method for the manufacture of a compound represented by the following Formula (1h):



where in the formula, $R^{1''}$, R^2 through R^4 and $R^{5'}$ through $R^{6'}$ are as previously defined; m is 1 or 2;

characterized in comprising the step of reacting a compound represented by the following Formula (1g):



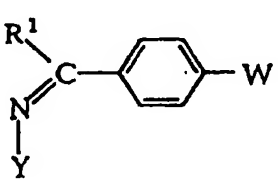
where in the formula, $R^{1''}$, R^2 through R^4 and $R^{5'}$ through $R^{6'}$ are as defined in claim 1;
with an oxidizer.

17. A pesticide for use in agriculture and horticulture having compound (1) as its active ingredient.



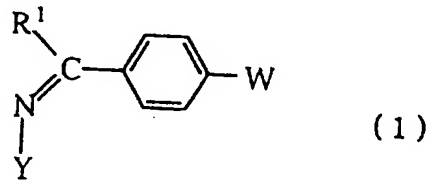
PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類6 C07C 225/16, 281/04, 317/24, 317/28, 323/22, 323/23, 323/45, C07D 207/50, 213/643, 233/64, 239/34, 239/38, 251/46, A01N 33/26, 43/40, 43/50, 43/54, 43/64, 47/12, 47/28</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO97/11050</p>
		<p>(43) 国際公開日 1997年3月27日 (27.03.97)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP96/02698</p> <p>(22) 国際出願日 1996年9月19日 (19.09.96)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平7/240210 1995年9月19日 (19.09.95) JP 特願平8/86327 1996年4月9日 (09.04.96) JP 特願平8/134067 1996年4月22日 (22.04.96) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 宇部興産株式会社 (UBE INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP] 〒755 山口県宇部市西本町1丁目12番32号 Yamaguchi, (JP)</p> <p>(72) 発明者: および</p> <p>(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 福田泰久 (FUKUDA, Yasuhisa) [JP/JP] 堤内清志 (TSUTSUMIUCHI, Kiyoshi) [JP/JP] 福田昌平 (FUKUDA, Shohei) [JP/JP] 五箇公一 (GOKA, Koichi) [JP/JP] 桑田孝明 (KUWATA, Takaaki) [JP/JP] 〒755 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部興産株式会社 宇部研究所内 Yamaguchi, (JP)</p>	<p>(74) 代理人 弁理士 津国 肇 (TSUKUNI, Hajime) 〒105 東京都港区虎ノ門1丁目22番12号 SVAX TSビル Tokyo, (JP)</p> <p>(81) 指定国 AU, BR, CN, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>	
<p>(54) Title: BENZYLIDENEHYDRAZINE COMPOUNDS, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME, AND AGRICULTURAL AND HORTICULTURAL PESTICIDES</p> <p>(54) 発明の名称 ベンジリデンヒドラジン化合物、その製法及び農園芸用の有害生物防除剤</p> <p>(57) Abstract Benzylidenetrihydrazine compounds represented by general formula (1) and agricultural and horticultural pesticides containing the same as the active ingredient, wherein W represents -O-Q (wherein Q represents an optionally substituted 6-membered ring having one to three nitrogen atoms) or -CR²R³(XR⁴) (wherein R² represents H, alkyl, cyano or halogeno, R³ represents H, alkyl or halogeno, and R⁴ represents H, alkyl, alkenyl, etc.); R¹ represents optionally substituted phenyl when W is -O-Q-, or optionally substituted phenyl, alkyl or haloalkyl when W is -CR²R³(XR⁴); Y represents -NR⁵R⁶ (wherein R⁵ represents H, and R⁶ represents H, alkoxycarbonyl or acyl) when W is -O-Q-, or -NR⁵R⁶, -N=CR⁷NR⁸R⁹ or -N=CR⁷R⁸R⁹ (wherein R⁷ and R⁸ are bonded to each other to form a 4- to 8-membered ring) when W is -CR²R³(XR⁴); and X represents S, SO, SO₂, O or NR²².</p> <div style="text-align: center;">  <p>(1)</p> </div>		

(57) 要約

次式(1) :



式中、Wは $-O-Q$; ここでQは置換されていてもよい窒素原子数1~3の6員環 ; 又は $-CR^2 R^3 (XR^4)$ を表わし ; ここで R^2 はH、アルキル基、シアノ基又はハロゲン原子を表わし ; R^3 はH、アルキル基又はハロゲン原子を表わし ; R^4 はH、アルキル基、アルケニル基等を表わし ; R^1 は、Wが $-O-Q$ のとき、置換していてもよいフェニル基を表わし ; Wが $-CR^2 R^3 (XR^4)$ のとき、置換していてもよいフェニル基、アルキル基又はハロアルキル基を表わす ;

Yは、Wが $-O-Q$ のとき、 $-NR^5 R^6$ を表わし ; ここで R^5 は、Hを表わし ; R^6 は、H、アルコキシカルボニル基又はアシル基を表わし ; Wが $-CR^2 R^3 (XR^4)$ のとき、 $-NR^5 R^6$ 、 $-N=CR^7 NR^8 R^9$ 又は R^7 と R^8 とが連結して4~8員環を形成した $-N=CR^7 NR^8 R^9$ を表わし ;

XはS、SO、SO₂、O又はNR²²を表わす ;

で示されることを特徴とするベンジリデンヒドラジン化合物及びその製造方法並びにそれを有効成分とする農園芸用の有害生物防除剤が開示される。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願をパンフレット第一頁にPCT加盟国を同定するために使用されるコード

AL	アルバニア	EE	エストニア	LR	リベリア	RU	ロシア連邦
AM	アルメニア	ES	スペイン	LS	レソト	SD	スーダン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LT	リトアニア	SE	スウェーデン
AU	オーストラリア	FR	フランス	LU	ルクセンブルグ	SG	シンガポール
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LV	ラトヴィア	SI	スロヴェニア
BB	バルバドス	GB	イギリス	MC	モナコ	SK	スロヴァキア共和国
BE	ベルギー	GE	グルジア	MD	モルドバ	SN	セネガル
BG	ブルガリア	GH	ガーナ	MG	マダガスカル	SZ	スワジランド
BJ	ベナン	GN	ギニア	MK	マケドニア旧ユーゴスラ	TD	チャード
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	ML	マリ	TG	トーゴ
BY	ベラルーシ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	TJ	タジキスタン
CA	カナダ	IE	アイアランド	MR	モーリタニア	TM	トルクメニスタン
CC	中央アフリカ共和国	IT	イタリア	MW	マラウイ	TR	トルコ
CG	コンゴ	JP	日本	MX	メキシコ	TT	トリニダード・トバゴ
CH	スイス	KE	ケニア	NE	ニジェール	UA	ウクライナ
CI	コート・ジボアール	KG	キルギスタン	NL	オランダ	UG	ウガンダ
CM	カメルーン	KR	朝鮮民主主義人民共和国	NO	ノルウェー	US	米国
CN	中国	KZ	大韓民国	NZ	ニュージーランド	UZ	ウズベキスタン共和国
DZ	チュニジア	LI	リヒテンシュタイン	PL	ポーランド	VN	ベトナム
DK	デンマーク	LK	スリランカ	PT	ポルトガル	YU	ユーゴスラビア
				RO	ルーマニア		

明 細 書

ベンジリデンヒドラジン化合物、その製法及び農園芸用の有害生物防除剤

技術分野

本発明は、新規なベンジリデンヒドラジン化合物、その製法及びそれを有効成分として含有する、殺虫剤などとして有用な農園芸用の有害生物防除剤に関するものである。

背景技術

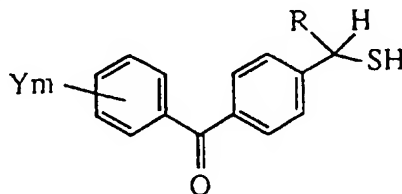
本発明の化合物に関連したヘテロ環オキシベンジリデンヒドラジン化合物としては、ドイツ特許2707764号に、ビスー及びトリス（グアニルヒドラゾニウム）塩が汚濁水の浄化に有用であることが開示されている。

また、Egypt. J. Chem., 23, 165 (1980) には、4-（6-フェニルピリダニルオキシ）ベンズアルデヒド又はアセトフェノン類のヒドラゾン化合物が、除草活性を期待できることが開示されている。

本発明のベンジリデンヒドラジン化合物の中で、置換アルキル基を有する化合物に近似した化合物としては、Current Science (India) 32 (9) 404-5 (1963) に、4-ヒドロキシメチルベンゾフェノン2, 4-ジニトロフェニルヒドラゾンが記載されており、その化合物は（4-ヒドロキシメチル）ジフェニルメタンの中間体であることが示されている。

しかし、これらの化合物の構造は、本発明の化合物の構造とは異なっており、また、殺虫剤などとしての有用性を示すか否かの検討もなされていない。

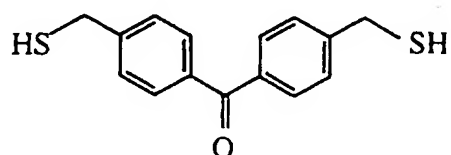
他方、本発明の置換アルキル基を有するベンジリデンテトラヒドラジン化合物の合成において重要である中間体に近似した化合物としては、特開昭62-294652号公報に、次式：



式中、Rは水素原子又は低級アルキル基を表わし；Yはハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基を表わし；mは、0、1、2又は3を表わす；ただし、ここで示したR、Y及びmの定義は、この化合物だけに限るものとする、

で示される化合物が記載されている。

また、J. Appl. Polym. Sci., 26 (4), 1148 (1981) には、次式：



で示される化合物がポリマーの原料として記載されている。

しかし、これらの化合物の構造は、前記のとおり本発明の化合物とは異なるものである。

従って、本発明のベンジリデンヒドラジン化合物が新規化合物であることから、殺虫剤などとして有用な農園芸用の有害生物防除活性を有することについても知られていない。

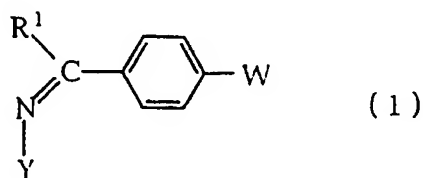
本発明の目的は、新規なベンジリデンヒドラジン化合物、その製法及びそれを有効成分として含有する、殺虫剤などとして有用な農園芸用の有害生物防除剤を提供することである。

発明の開示

本発明者らは、前記の目的を達成するために検討した結果、新規なベンジリデンヒドラジン化合物が殺虫剤などとして有用な農園芸用の有害生物防除剤として顕著な防除活性を有することを見出し、本発明を完成するに至った。

即ち、本発明は次の通りである。

第1の発明は、次式(1)：



式中、Wは $-O-Q$ ；ここでQは無置換、又はハロゲン原子、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のハロアルコキシ基もしくは炭素原子数1～8のアルキルアミノ基から選択される少なくとも一の置換基で置換された窒素原子数1～3の6員環を表わす；又は

$-CR^2R^3(XR^4)$ を表わし；ここで R^2 は水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基、シアノ基又はハロゲン原子を表わし； R^3 は水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基又はハロゲン原子を表わし； R^4 は水素原子、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、無置換又は置換基としてハロゲン原子もしくは炭素原子数1～4のアルキル基を有するフェニル基、ベンジル基、フェネチル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数2～6のハロアルケニル基、炭素原子数1～4のアルキルスルホニル基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニル基、シアノ基、 A^1COOR^{10} 、 A^1OR^{10} 、 COA^1OR^{10} 、 $CSOR^{10}$ 又はシアノアルキル基を表わす；ここで

A^1 は炭素原子数1～4のアルキレン基を表わし；

R^{10} は炭素原子数1～4のアルキル基を表わす；

R^1 は、Wが $-O-Q$ のとき、無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数1～4のアルキル基もしくはピリミジニルオキシ基を有するフェニル基を表わし；

Wが $-CR^2R^3(XR^4)$ のとき、無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、ニトロ基、シアノ基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数1～4のハロアルコキシ基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニルオキシ基もしくは炭素原子数1～4のアルキルスルホニルオキシ基を有するフェニル基、炭素原子数1～8のアルキル基又は炭素原子数1～4のハロアルキル基を表わす；

Yは、Wが $-O-Q$ のとき、 $-NR^5 R^6$ を表わし；ここで

R^5 は、水素原子を表わし；

R^6 は、水素原子、炭素原子数2～5のアルコキシカルボニル基又は炭素原子数2～5のアルキルカルボニル基を表わし；又は、

R^5 と R^6 とはNと共に、 $-N=CR^7 NR^8 R^9$ を形成してもよく、ここで R^7 、 R^8 及び R^9 は、それぞれ独立して炭素原子数1～4のアルキル基を表わす；

Wが $-CR^2 R^3 (XR^4)$ のとき、 $-NR^{5'} R^{6'}$ 、 $-N=CR^{7'} NR^{8'} R^{9'}$ 又は $R^{7'}$ と $R^{8'}$ とが連結して4～8員環を形成した $-N=CR^{7'} NR^{8'} R^{9'}$ を表わす；ここで、

$R^{5'}$ は水素原子、ホルミル基、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、 $COOR^{11}$ 、 COR^{12} 、 $SO_2 R^{13}$ 、 $SO_2 NHR^{10}$ 、 $SO_2 NHCH_2 Ph$ 、 $SO_2 NR^{10} R^{10'}$ 、 $CONHR^{14}$ 、 $CSNHR^{15}$ 、 $A^1 COOR^{10}$ 、 $COA^2 R^{16}$ 、 $CONR^{10} R^{10'}$ 、 $CSSR^{10}$ 又は $A^1 OR^{10}$ を表わし；

$R^{6'}$ は水素原子、ホルミル基、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、 $COOR^{17}$ 、 COR^{18} 、 $SO_2 R^{13}$ 、 $COA^1 R^{19}$ 、 $COCOO R^{10}$ 、 $SCR^{20} R^{20} R^{20}$ 、 $SNR^{21} R^{21'}$ 、 $A^1 OR^{21}$ 、 $CH_2 OA^1 OR^{10}$ 、 $SNR^{10} COOR^{21}$ 、 $SNR^{10} A^1 COOR^{10'}$ 、 $A^1 SR^{16}$ 又はベンジル基を表わし；

$R^{5'}$ と $R^{6'}$ とはNと共に連結して4～8員環を形成することができる；

$R^{7'}$ は水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基又はフェニル基を表わし；

$R^{8'}$ は水素原子又は炭素原子数1～4のアルキル基を表わし；

$R^{9'}$ は水素原子、ホルミル基、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、 COR^{10} 又はフェニル基を表わし；

A^1 及び R^{10} は前記と同義であり；

A^2 は炭素原子数1～10のアルキレン基を表わし；

Phはフェニル基を表わし；

R¹⁰は炭素原子数1～4のアルキル基を表わし；

R¹¹は炭素原子数1～8のアルキル基、フェニル基、ベンジル基又は炭素原子数3～5のアルケニル基を表わし；

R¹²は炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、無置換もしくはハロゲン原子、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数1～4のアルキル基、水酸基、炭素原子数1～4のアルコキシ基を置換基として有するフェニル基又は無置換もしくはハロゲン原子を置換基として有するピリジル基を表わし；

R¹³は炭素原子数1～4のアルキル基又は炭素原子数1～4のハロアルキル基を表わし；

R¹⁴は無置換もしくは炭素原子数1～4のハロアルキル基を置換基として有するフェニル基、炭素原子数1～8のアルキル基又はフェニルスルホニル基を表わし；

R¹⁵はフェニル基又は炭素原子数1～4のアルキル基を表わし；

R¹⁶は炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数2～4のアルキルカルボニルオキシ基、ハロゲン原子、イミダゾール基、炭素原子数2～5のアルキルカルボニルアミノ基又はピリジル基を表わし；

R¹⁷は炭素原子数1～8のアルキル基、フェニル基、ベンジル基又は炭素原子数2～5のアルケニル基を表わし；

R¹⁸は炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、フェニル基、炭素原子数2～5のアルケニル基又は無置換もしくは置換基としてハロゲン原子を有するピリジル基を表わし；

R¹⁹は炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、COOR¹⁹を表わし；

R²⁰はハロゲン原子を表わし；

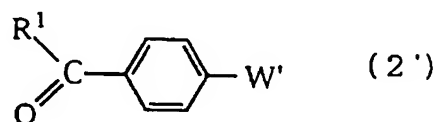
R²¹及びR^{21'}は炭素原子数1～8のアルキル基を表わし；

XはS、SO、SO₂、O又はNR²²を表わす；ここで、

R²²は水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数2～5のアルキルカルボニル基又はホルミル基を表わす；

で示されるベンジリデンヒドラジン化合物（化合物（1））に関する。

第2の発明は、次式（2'）：



式中、W' は-O-Q' 又は-CR²R³ (XR^{4'})を表わし；ここで

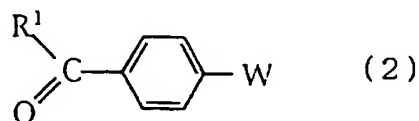
Q' はピリミジニル基、置換基として炭素原子数1～4のハロアルキル基を有するピリジニル基又は置換基として炭素原子数1～4のアルコキシ基と炭素原子数1～8のアルキルアミノ基とを有するトリアジニル基を表わし；

R^{4'}は炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、無置換又は置換基としてハロゲン原子もしくは炭素原子数1～4のアルキル基を有するフェニル基、ベンジル基、フェネチル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数2～6のハロアルケニル基、炭素原子数1～4のアルキルスルホニル基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニル基、シアノ基、A'COOR¹⁰、A'OR¹⁰、COA'OR¹⁰、CSOR¹⁰又はシアノアルキル基を表わし；

R¹～R³、R¹⁰、A'及びXは前記と同義である；

で示される化合物（化合物（2'））に関するものである。

第3の発明は、次式（2）：



式中、R¹及びWは、前記と同義である；

で示される化合物と

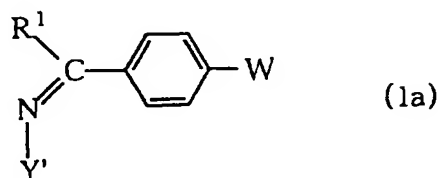
次式（3）：



式中、 Y' は W が $-O-Q$ のとき、 $-NR^5 R^6$ を表わし、 W が $-CR^2 R^3$ (XR^4) のとき、 $-NR^{5'} R^{6'}$ を表わす；ここで、 R^5 、 R^6 、 $R^{5'}$ 及び $R^{6'}$ は前記と同義である；

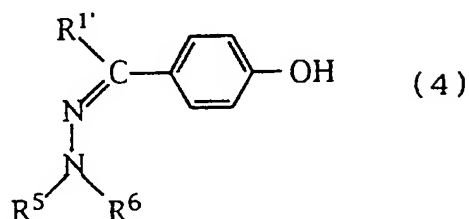
で示される化合物とを反応させることを特徴とする

次式 (1a)：



式中、 R^1 、 Y' 及び W は、前記と同義である；
で示される化合物 (1a) の製法に関するものである。

第4の発明は、次式 (4)：



式中、 $R^{1'}$ は、無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数 1～4 のアルキル基もしくはピリミジニルオキシ基を有するフェニル基を表わし；
 R^5 及び R^6 は、前記と同義である；

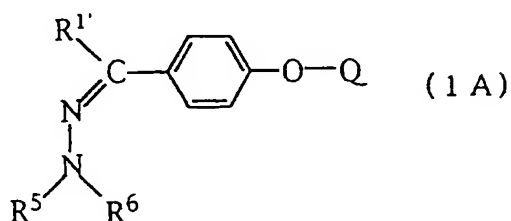
で示される化合物と

次式 (5)：



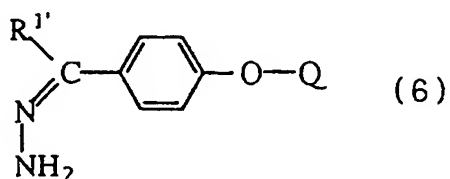
式中、 Q は、前記と同義であり； Z は脱離基を表わす；
で示される化合物とを反応させることを特徴とする、

次式 (1A)：



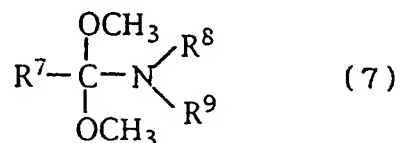
式中、 $R^{1'}$ 、 R^5 、 R^6 及び Q は、前記と同義である；
 で示されるヘテロ環オキシベンジリデンヒドラジン化合物の製法に関するものである。

第5の発明は、次式(6)：



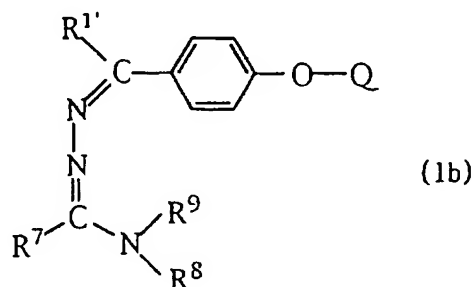
式中、 $R^{1'}$ 及び Q は、前記と同義である；
 で示される化合物と

次式(7)：



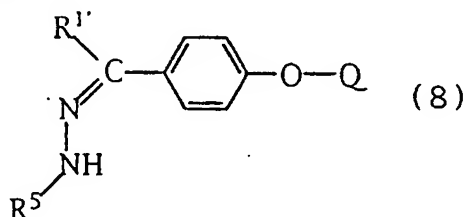
式中、 R^7 、 R^8 及び R^9 は、前記と同義である；
 で示される化合物とを反応させることを特徴とする、

次式(1b)：



式中、 $R^{1'}$ 、 R^7 、 R^8 、 R^9 及び Q は、前記と同義である；
 で示されるヘテロ環オキシベンジリデンヒドラジン化合物の製法に関するものである。

第6の発明は、次式(8)：



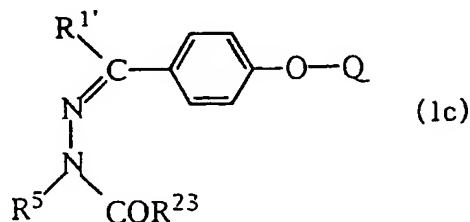
式中、 $R^{1'}$ 、 R^5 及び Q は、前記と同義である；
 で示される化合物と

次式 (9)：



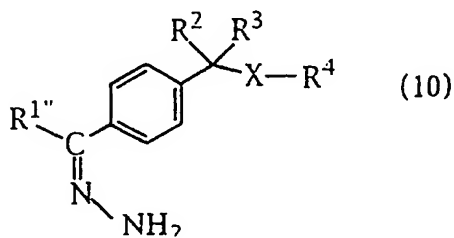
式中、 R^{23} は、炭素原子数 1～4 のアルコキシ基又は炭素原子数 1～4 のアルキル基を表し； Z' は、脱離基を表わす；
 で示される化合物とを反応させることを特徴とする、

次式 (1c)：



式中、 $R^{1'}$ 、 R^5 、 Q 及び R^{23} は、前記と同義である；
 で示されるヘテロ環オキシベンジリデンヒドラジン化合物の製法に関するものである。

第 7 の発明は、次式 (10)：



式中、 $R^{1''}$ は無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数 1～4 のアルキル基、炭素原子数 1～4 のハロアルキル基、ニトロ基、シアノ基、炭素原子数 1～4 のアルコキシ基、炭素原子数 1～4 のアルキルチオ基、炭素原子数 1～4 のハロアルコキシ基、炭素原子数 1～4 のハロアルキルスルホニルオキシ基もしくは炭素原子数 1～4 のアルキルスルホニルオキシ基を有するフェニル基、炭素原子数 1～8 のアルキル基又は炭素原子数 1～4 のハロアルキル基を表わし； $R^2 \sim R^4$ 及び X は、前記と同義である；

で示される化合物と

10

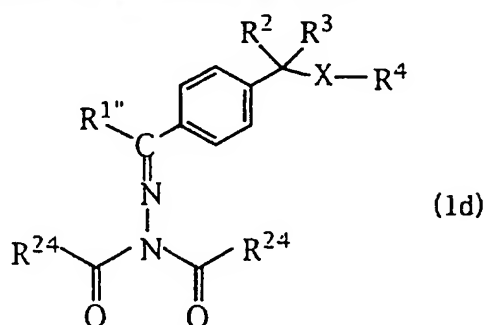
次式 (11) :



式中、 R^{24} は、 R^{10} 、 OR^{11} 、 NHR^{14} 又は $\text{NR}^{10}\text{R}^{10'}$ を表わし；Zは、ハロゲン原子、 OCOR^{13} 、 OR^{10} 、 OH を表わす；なお、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{13} 及び R^{14} は、前記と同義である；

で示される化合物とを反応させることを特徴とする

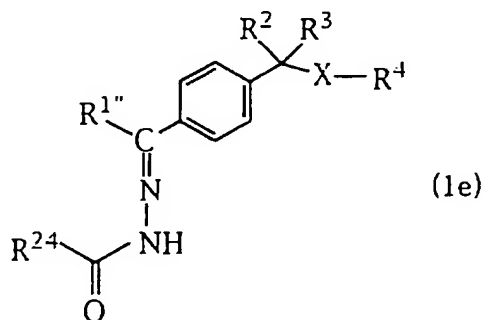
次式 (1d) :



式中、 $\text{R}^{1''} \sim \text{R}^4$ 、X及び R^{24} は、前記と同義である；

で示される化合物) 及び

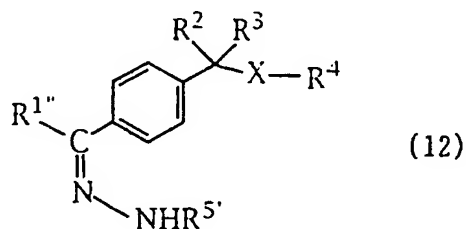
次式 (1e) :



式中、 $\text{R}^{1''}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^4$ 、X及び R^{24} は、前記と同義である；

で示される化合物の製法に関するものである。

第8の発明は、次式 (12) :



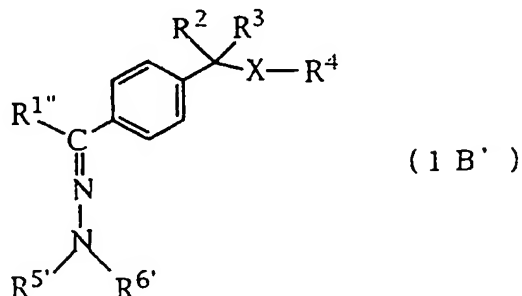
式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 $R^{5'}$ 及びXは、前記と同義である；
で示される化合物と

次式 (13) :



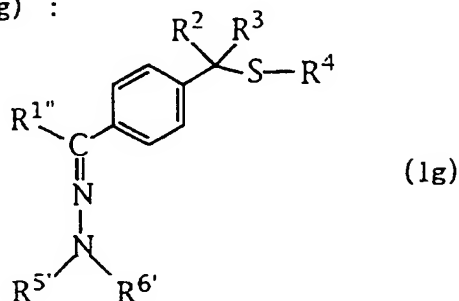
式中、 $R^{6'}$ は、前記と同義であり；Gは、ハロゲン原子又は $OCOR^{13}$ を表わす；ここで、 R^{13} は前記と同義である；
で示される化合物とを反応させることを特徴とする

次式 (1B') :



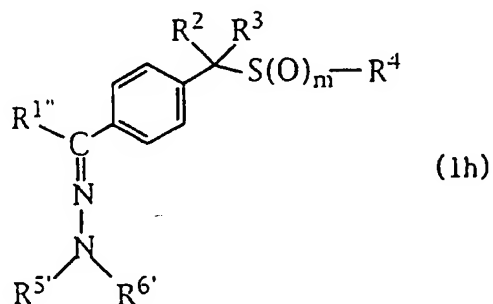
式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 $R^{5'} \sim R^{6'}$ 及びXは、前記と同義である；
で示される化合物の製法に関するものである。

第9の発明は、次式 (1g) :



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 及び $R^{5'} \sim R^{6'}$ は、前記と同義である；
で示される化合物と酸化剤とを反応させることを特徴とする

次式 (1h) :



式中、 $R^{1'}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 及び $R^{5'} \sim R^{6'}$ は、前記と同義であり； m は、1又は2である；

で示される化合物 (1h) の製法に関するものである。

第10の発明は、前記の化合物 (1) を有効成分とする農園芸用の有害生物防除剤に関するものである。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明の目的化合物である式 (1) において R^1 が $R^{1'}$ であり、 Y が $-NR^5$ 、 R^6 であり、 W が $-O-Q$ である新規なヘテロ環オキシベンジリデンヒドラジン化合物 (前記化合物 (1A)) 及びその製造原料 (化合物 (2) ~ (9)) における各置換基 $R^{1'}$ 、 $R^5 \sim R^6$ 、 $R^7 \sim R^9$ 、 Q 、 Q' 、 Z 及び Z' は以下のとおりである。

$R^{1'}$ としては、無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数1~4のアルキル基もしくはピリミジニルオキシ基を有するフェニル基を挙げることができる。

ハロゲン原子としては、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などを挙げることができるが；塩素原子、フッ素原子が好ましい。ハロゲン原子の置換位置は特に限定されないが；好ましくは、2，3又は4位などである。

アルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが；好ましくは CH_3 である。アルキル基の置換位置は特に限定されないが；好ましくは、2，3又は4位などである。

ピリミジニルオキシ基としては、炭素原子数1~4の直鎖状又は分岐状のアルコキシ基を有するものを挙げることができるが；好ましくは4，6-ジメトキシ-2-ピリミジニルオキシ基である。ピリミジニルオキシ基の置換位置は特に限定されないが；好ましくは、4位である。

R^5 としては、水素原子を挙げることができる。

R^6 としては、水素原子、炭素原子数2~5のアルキルカルボニル基、炭素原子数2~5のアルコキシカルボニル基などを挙げることができる。

アルキルカルボニル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが；好ましくは COCH_3 である。

アルコキシカルボニル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが；好ましくは COOC_2H_5 である。

R^5 と R^6 とはNと共に、 $-\text{N}=\text{CR}^7\text{NR}^8\text{R}^9$ を形成することもできる。

R^7 , R^8 及び R^9 としては、それぞれ独立した炭素原子数1～4のアルキル基を挙げることができる。

R^7 , R^8 及び R^9 におけるアルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが；好ましくは CH_3 である。

Qとしては、置換又は無置換の窒素原子数1～3の6員環を挙げることができる。

6員環としては、ピリミジニル基、ピリジル基、トリアジニル基などを挙げることができる。

ピリミジニル基としては、好ましくは4-ピリミジニル基、2-ピリミジニル基である。

ピリジル基としては、好ましくは2-ピリジル基である。

トリアジニル基としては、好ましくは1, 3, 5-トリアジニル基である。

ピリミジニル基、ピリジル基及びトリアジニル基における置換基としては、ハロゲン原子、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルコキシ基、炭素原子数1～8のアルキルアミノ基を挙げることができる。この置換基についての詳細は、次のとおりである。

ハロゲン原子としては、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などを挙げることができるが；塩素原子が好ましい。

アルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが；好ましくは CH_3 である。

アルキルチオ基としては、直鎖状又は分岐状のアルキル基を有するものを挙げることができるが；好ましくは SCH_3 である。

この置換基のアルコキシ基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることが

できるが；好ましくは OCH_3 ， OC_2H_5 である。

ハロアルキル基としては、アルキルが直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げることができるが；好ましくは炭素原子数が1～4のフッ素原子を有するものであり；さらに好ましくは CF_3 である。

ハロアルコキシ基としては、アルコキシが直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げることができるが；好ましくは炭素原子数が1～4のフッ素原子を有するものであり；さらに好ましくは $-\text{OCHF}_2$ である。

アルキルアミノ基としては、好ましくは炭素原子数が1～4で直鎖状又は分岐状のアルキル基を2個有するものであり；さらに好ましくはジメチルアミノ基である。

ピリミジニル基における置換基としては、好ましくはハロゲン原子、アルキル基、アルキルチオ基、アルコキシ基、ハロアルキル基、ハロアルコキシ基である。そして、4-ピリミジニル基における置換基としては、好ましくはハロゲン原子、アルキル基、アルキルチオ基、アルコキシ基、ハロアルキル基であり；2-ピリミジニル基における置換基としては、好ましくはアルコキシ基、ハロアルキル基、アルキル基、ハロアルコキシ基、ハロゲン原子である。

ピリジル基における置換基としては、好ましくはハロアルキル基、ハロゲン原子である。

トリアジニル基における置換基としては、好ましくはアルコキシ基及びアルキルアミノ基である。

Q' としては、ピリミジニル基、置換基として炭素原子数1～4のハロアルキル基を有するピリジル基、置換基として炭素原子数1～4のアルコキシ基と炭素原子数1～8のアルキルアミノ基とを有するトリアジニル基などを挙げることができる。

Q' におけるピリミジニル基、ハロアルキル基、アルコキシ基及びアルキルアミノ基としては、 Q において記載したものを挙げることができるが； Q' がピリミジニル基の場合には、 R' は好ましくは、無置換又は置換基としてハロゲン原

子、炭素原子数1～4のアルキル基もしくはピリミジニルオキシ基を有するフェニル基であり；Q' がハロアルキル基を有するピリジル基の場合には、R^{1'}は好ましくは、置換基としてハロゲン原子を有するフェニル基であり；Q' がアルコキシ基とアルキルアミノ基とを有するトリアジニル基の場合には、R^{1'}は好ましくは、置換基としてハロゲン原子を有するフェニル基である。

Zは脱離基であり、特に限定されず、例えば、ハロゲン原子、アルキルスルホニル基、アルキルチオ基、アルキルスルフィニル基、アリアルチオ基、アリアルスルフィニル基、アリアルスルホニル基、アラルキルチオ基、アラルキルスルフィニル基、アラルキルスルホニル基、トリアルキルアミノ基などを挙げることができるが；好ましくはハロゲン原子、アルキルスルホニル基であり；さらに好ましくは、塩素原子、メタンスルホニル基である。

Z' は脱離基であり、特に限定されず、例えば、ハロゲン原子、アシルオキシ基、アルキルチオ基、アリアルチオ基、イミダゾール基、アルコキシ基、フェノキシ基などを挙げることができるが；好ましくはハロゲン原子、アシルオキシ基であり；さらに好ましくは、アシルオキシ基である。

また、本発明の化合物(1A)には、幾何異性体及びその混合物も含まれる。

化合物(1A)としては、前記の各種の置換基を組み合わせたものを挙げることができるが、薬効の面から好ましいものは、次の通りである。

- (a) R^{1'}がフェニル基であり、R⁵ とR⁶ とがNと共に、 $-N=C(CH_3)_2$ を形成し、Qがピリミジニル基である化合物。
- (b) R^{1'}がフェニル基であり、R⁵ とR⁶ とがNと共に、 $-N=C(CH_3)_2$ を形成し、Qがピリジル基である化合物。
- (c) R^{1'}がフェニル基であり、R⁵ 及びR⁶ が水素原子であり、Qがピリミジニル基である化合物。
- (d) R^{1'}がフェニル基であり、R⁵ が水素原子であり、R⁶ が炭素原子数2～5のアルコキシカルボニル基であり、Qがピリミジニル基である化合物。
- (e) R^{1'}がフェニル基であり、R⁵ が水素原子であり、R⁶ が炭素原子数2～5のアルコキシカルボニル基であり、Qがトリアジニル基である化合物。
- (f) R^{1'}がフェニル基であり、R⁵ が水素原子であり、R⁶ が炭素原子数2～5

のアルコキシカルボニル基であり、Qがピリジル基である化合物。

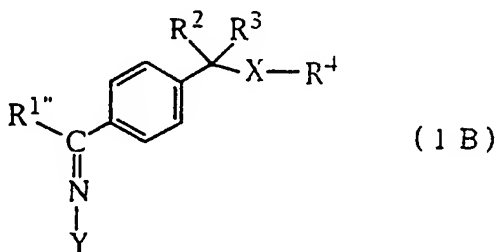
(g) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^5 と R^6 とがNと共に、 $-N=C(CH_3)_2$ を形成し、Qがトリアジニル基である化合物。

(h) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が炭素原子数2～5のアルキルカルボニル基であり、Qがピリミジニル基である化合物。

これらの好ましい組み合わせからなる(a)～(h)で示した化合物(1A)の $R^{1'}$ 、 $R^5 \sim R^6$ 及びQとしては、前記の説明箇所を示した好ましいもの、及びさらに好ましいものを例示することができる。

これらの具体的な化合物(1A)としては、後述の表2中に記載した化合物(1A-1)～(1A-10)、(1A-12)～(1A-14)、(1A-16)、(1A-17)、(1A-19)、(1A-20)、(1A-22)～(1A-24)、(1A-26)、(1A-28)、(1A-29)、(1A-33)、(1A-35)～(1A-38)、(1A-46)、(1A-49)～(1A-53)、(1A-56)などを挙げるができる。

一方、本発明の目的化合物である式(1)において、 R^1 が $R^{1''}$ であり、Yが $-NR^5 \cdot R^6$ 、 $-N=CR^7 \cdot NR^8 \cdot R^9$ 又は R^7 と R^8 とが連結して4～8員環を形成した $-N=CR^7 \cdot NR^8 \cdot R^9$ であり、Wが $-CR^2 \cdot R^3$ (XR^4)である下記一般式(1B)：

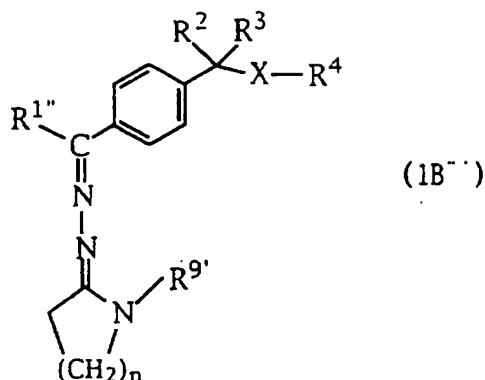


各置換基は前記と同義である；

で示される新規な置換アルキルベンジリデンヒドラジン化合物及びその製造原料(化合物(2)及びその新規な化合物(2')、化合物(3)など)における各種の置換基は、次のとおりである。

化合物(1B)としては、Yが $-NR^5 \cdot R^6$ 又は $-N=CR^7 \cdot NR^8 \cdot R^9$ で示されるものを挙げるができる。

そして、 $CR^7 \cdot NR^8 \cdot R^9$ における R^7 と R^8 とは、次式(1B'')：



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 $R^{9'}$ 及びXは、前記と同義であり； n は1～5の整数を表わす；

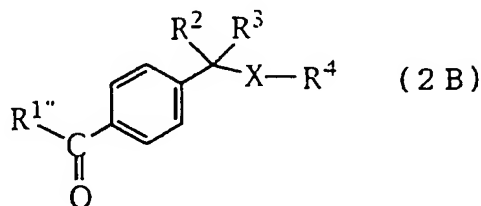
に示すように、連結して4～8員環を形成してもよく；好ましくは $n=2$ で5員環を形成したピロリジンである。

以下、Yが $-NR^{5'}R^{6'}$ で表される化合物を化合物(1B')、 $-N=CR^{7'}NR^{8'}R^{9'}$ で表される化合物を化合物(1B'')、 $-N=CR^{7'}NR^{8'}R^{9'}$ における $R^{7'}$ と $R^{8'}$ とが連結して4～8員環を形成した化合物を化合物(1B''')と称する。

$R^{1''}$ としては、フェニル基、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基などを挙げることができる。

化合物(1B)における $R^{1''}$ としては、好ましくはフェニル基、炭素原子数1～8のアルキル基であり；さらに好ましくは化合物(1B')ではフェニル基、炭素原子数1～8のアルキル基であり、化合物(1B'')及び化合物(1B''')ではフェニル基である。

化合物(2)において、 R^1 が $R^{1''}$ であり、Wが $-CR^2R^3(XR^4)$ である下記一般式(2B)：



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 及びXは、前記と同義である；

で示される化合物における $R^{1''}$ としては、好ましくはフェニル基及び炭素原子数

1～8のアルキル基が挙げられる。

フェニル基としては、無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数1～4のハロアルキル基、ニトロ基、シアノ基、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数1～4のハロアルコキシ基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニルオキシ基もしくは炭素原子数1～4のアルキルスルホニルオキシ基を有するものを挙げることができる。

化合物(1B')におけるフェニル基としては、無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数1～4のハロアルキル基、ニトロ基、シアノ基、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数1～4のハロアルコキシ基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニルオキシ基もしくは炭素原子数1～4のアルキルスルホニルオキシ基を有するものであり；化合物(1B'')及び化合物(1B''')におけるフェニル基では、好ましくは置換基としてハロゲン原子を有するものである。

化合物(2B)におけるフェニル基としては、好ましくは無置換又は置換基としハロゲン原子、炭素原子数1～4のハロアルキル基、ニトロ基、シアノ基、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数1～4のハロアルコキシ基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニルオキシ基もしくは炭素原子数1～4のアルキルスルホニルオキシ基を有するものが挙げられる。

置換基のハロゲン原子としては、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などを挙げることができる。そして、置換基の数及び位置は特に限定されないが；好ましくは、置換基の数は1もしくは2であり、置換基の位置は2位、3位、4位である。

置換基のハロアルキル基としては、アルキルが直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げることができるが、好ましくは炭素原子数が1～4のフッ素原子を有するものであり、さらに好ましくは-CF₃である。そして、置換基の数及び位置は特に限定されないが、好ましくは、置換基の数は1であり、置換基の位置は好ましく

は4位である。

置換基のニトロ基の数及び位置は特に限定されないが、好ましくは、置換基の数は1であり、置換基の位置は好ましくは4位である。

置換基のシアノ基の数及び位置は特に限定されないが、好ましくは、置換基の数は1であり、置換基の位置は好ましくは4位である。

置換基のアルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが、好ましくは CH_3 である。置換基の数及び位置は特に限定されないが、好ましくは、置換基の数は1であり、置換基の位置は好ましくは4位である。

置換基のアルコキシ基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが、好ましくは OCH_3 である。置換基の数及び位置は特に限定されないが好ましくは、置換基の数は1であり、置換基の位置は好ましくは4位である。

置換基のアルキルチオ基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが、好ましくは SCH_3 である。置換基の数及び位置は特に限定されないが好ましくは、置換基の数は1であり、置換基の位置は好ましくは4位である。

置換基のハロアルコキシ基としては、直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げることができるが、好ましくはフッ素原子を有するものであり、さらに好ましくは OCH_2CF_3 、 OCF_3 、 OCHF_2 、 OCBrF_2 である。置換基の数及び位置は特に限定されないが好ましくは、置換基の数は1であり、置換基の位置は好ましくは4位である。

置換基のハロアルキルスルホニルオキシ基としては、直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げることができるが、好ましくは OSO_2CF_3 である。置換基の数及び位置は特に限定されないが好ましくは、置換基の数は1であり、置換基の位置は好ましくは4位である。

置換基のアルキルスルホニルオキシ基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが、好ましくは OSO_2CH_3 である。置換基の数及び位置は特に限定されないが好ましくは、置換基の数は1であり、置換基の位置は好ましくは4位である。

炭素原子数 1～8 のアルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げる事ができるが、好ましくは 1～6 のものであり、さらに好ましくは $\text{t-C}_4\text{H}_9$ などである。

炭素原子数 1～4 のハロアルキル基としては、直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げる事ができる。

R^2 としては、水素原子、炭素原子数 1～4 のアルキル基、シアノ基、ハロゲン原子などを挙げる事ができるが、化合物 (1 B') では、好ましくは水素原子及びアルキル基であり；化合物 (1 B'') では、好ましくは水素原子、アルキル基であり；化合物 (1 B''') では、好ましくは水素原子であり；化合物 (2 B) では、好ましくは水素原子及びアルキル基である。

アルキル基及びハロゲン原子としては、 $R^{1'}$ に記載したものと同一ものを挙げる事ができるが；好ましくは、アルキル基は CH_3 である。

R^3 としては、水素原子、炭素原子数 1～4 のアルキル基、ハロゲン原子などを挙げる事ができるが；化合物 (1 B') では、好ましくは水素原子及びアルキル基であり；化合物 (1 B'') では、好ましくは水素原子及びアルキル基であり；化合物 (1 B''') では、好ましくは水素原子であり；化合物 (2 B) では、好ましくは水素原子及びアルキル基である。

アルキル基及びハロゲン原子としては、 $R^{1'}$ に記載したものと同一ものを挙げる事ができるが、好ましくは、アルキル基は CH_3 である。

R^4 としては、炭素原子数 1～8 のアルキル基、炭素原子数 2～5 のアルケニル基、炭素原子数 3～8 のシクロアルキル基、炭素原子数 2～5 のアルキニル基、フェニル基、ベンジル基、フェネチル基、炭素原子数 1～4 のハロアルキル基、炭素原子数 2～6 のハロアルケニル基、炭素原子数 1～4 のアルキルスルホニル基、炭素原子数 1～4 のハロアルキルスルホニル基、シアノ基、 $\text{A}^1\text{COOR}^{10}$ 、水素原子、 A^1OR^{10} 、 $\text{COA}^1\text{OR}^{10}$ 、 CSOR^{10} 、シアノアルキル基などを挙げる事ができる (A^1 は炭素原子数 1～4 のアルキレン基を表し； R^{10} は炭素原子数 1～4 のアルキル基を表す。)

化合物(1B)における R^4 としては、好ましくは、化合物(1B')では炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、フェニル基、ベンジル基、フェネチル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数2～6のハロアルケニル基、炭素原子数1～4のアルキルスルホニル基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニル基、シアノ基、 A^1COOR^{10} 、水素原子、 A^1OR^{10} 、 COA^1OR^{10} 、シアノアルキル基などであり；化合物(1B'')では炭素原子数1～6のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、フェニル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基などであり；化合物(1B''')では炭素原子数1～6のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、フェニル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基などが挙げられる。

化合物(2B)における R^4 としては、好ましくは、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、フェニル基、ベンジル基、フェネチル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数2～6のハロアルケニル基、炭素原子数1～4のアルキルスルホニル基、シアノ基、水素原子、 $CSOR^{10}$ 、シアノアルキル基などが挙げられる。

アルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げるができるが、好ましくは炭素原子数が1～4のものであり、さらに好ましくは CH_3 、 C_2H_5 、 $n-C_3H_7$ 、 $i-C_3H_7$ 、 $n-C_4H_9$ 、 $s-C_4H_9$ 、 $t-C_4H_9$ である。

アルケニル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げるができるが、好ましくは炭素原子数が3のものであり、さらに好ましくは $CH_2CH=CH_2$ である。

シクロアルキル基としては、好ましくは炭素原子数が3～6のものであり、さらに好ましくは炭素原子数が5又は6のものである。

アルキニル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げるができるが、好ましくは炭素原子数が3のものであり、さらに好ましくは $CH_2C\equiv CH$ である。

る。

フェニル基としては、無置換又は置換基としてハロゲン原子もしくは炭素原子数1～4のアルキル基を有するものを挙げるができる。

化合物(1B^{''})及び化合物(1B^{'''})におけるフェニル基としては、好ましくは無置換のものである。

フェニル基の置換基のアルキル基及びハロゲン原子としては、R^{1''}に記載したものと同一ものを挙げるができるが、好ましくは、アルキル基はCH₃であり、ハロゲン原子は塩素原子である。置換基の位置は特に限定されないが好ましくは、4位である。

ハロアルキル基としては、アルキルが直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げるができるが；好ましくは炭素原子数が1～4の塩素原子、臭素原子及び／又はフッ素原子を有するものである。好ましいハロアルキル基としては、CHF₂、CF₃、CH₂CF₃、CH₂CCl₃、CH₂C₂F₅、CH(CF₃)₂、CBrF₂、CHFCHF₂、CF₂CFC₁H、CF₂CHF₂CF₃、CH₂CH₂CF₃、CH₂Cl、CF₂CHC₁Fなどを挙げることができ；さらに好ましくは、CHF₂、CH₂CF₃、CF₃、CH₂Cl、CF₂CHC₁Fなどが挙げられる。

ハロアルケニル基としては、アルケニルが直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げるができるが、好ましくは炭素原子数が2～5のフッ素原子を有するものであり；さらに好ましくはCH=CH-CF=CF₂、CF=CF₂CF₃及びCF=CHFが挙げられる。

アルキルスルホニル基としては、アルキルが直鎖状又は分岐状のものを挙げるができるが；好ましくはSO₂CH₃である。

ハロアルキルスルホニル基としては、アルキルが直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げるができるが、好ましくはSO₂CF₃である。

$A^1 COOR^{10}$ としては、 A^1 が炭素原子数1～4のアルキレン基であり、 R^{10} が直鎖状又は分岐状の炭素原子数1～4のアルキル基であるものを挙げる事ができるが、好ましくは $CH_2 COOC_2H_5$ である。

$A^1 OR^{10}$ は、最も好ましくは $CH_2 OCH_3$ である。

$COA^1 OR^{10}$ は、最も好ましくは $COCH_2 OCH_3$ である。

$CSOR^{10}$ は、最も好ましくは $CSOC_2H_5$ である。

シアノアルキル基は、最も好ましくは $CH_2 CN$ である。

R^5 としては、 $COOR^{11}$ 、水素原子、 COR^{12} 、 $SO_2 R^{13}$ 、 $SO_2 NH R^{10}$ 、 $SO_2 NHCH_2 Ph$ （なお、 Ph はフェニル基を表す。）、 $SO_2 NR^{10}R^{10'}$ 、 $CONHR^{14}$ 、 $CSNHR^{15}$ 、 $A^1 COOR^{10}$ 、 $COA^2 R^{16}$ 、 $CONR^{10}R^{10'}$ 、 $CSSR^{10}$ 、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、ホルミル基、 $A^1 OR^{10}$ などを挙げる事ができる。

$COOR^{11}$ としては、 R^{11} が炭素原子数1～8のアルキル基、フェニル基、ベンジル基、又は炭素原子数3～5のアルケニル基であるものを挙げる事ができる。このうち、アルキル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状の炭素原子数が1～6のもの、さらに好ましくは炭素原子数1～4のものであり；アルケニル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げる事ができるが、好ましくは $-CH_2 CH=CH_2$ である。

COR^{12} としては、 R^{12} が炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、フェニル基又はピリジル基であるものを挙げる事ができる。

R^{12} におけるアルキル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状の炭素原子数が1～6のもの、さらに好ましくは炭素原子数1～4のものである。

R^{12} におけるハロアルキル基としては、アルキルが直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げる事ができるが、好ましくは炭素原子数が1～4でフッ素原子を有するものであり、さらに好ましくは CF_3 である。

R^{12} におけるシクロアルキル基としては、好ましくは炭素原子数が3～6のも

のであり、さらに好ましくは炭素原子数が3のものである。

R^{12} におけるフェニル基としては、無置換もしくはハロゲン原子、炭素原子数1～4のアルキル基、水酸基、炭素原子数1～4のアルコキシ基を置換基として有するものを挙げることができ；置換基のハロゲン原子としては、好ましくはフッ素原子、塩素原子であり、置換基のアルキル基としては、好ましくは CH_3 であり、置換基のアルコキシ基としては、好ましくは OCH_3 である。

R^{12} におけるピリジル基としては、無置換もしくはハロゲン原子を置換基として有するもの（2-ピリジル基、3-ピリジル基、又は4-ピリジル基）を挙げることができ；ハロゲン原子としては、好ましくは塩素原子である。

$SO_2 R^{13}$ としては、 R^{13} が炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基であるものを挙げることができ；アルキル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のものであり、さらに好ましくは CH_3 であり；ハロアルキル基としては、アルキルが直鎖状又は分岐状であり、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などのハロゲン原子を有するものを挙げることができるが、好ましくは炭素原子数が1～4でフッ素原子を有するものであり、さらに好ましくは CF_3 である。

$SO_2 NHR^{10}$ としては、最も好ましくは $SO_2 NHCH_3$ 、 $SO_2 NHC_2H_5$ 又は $SO_2 NHC_3H_7-n$ である。

$SO_2 NR^{10}R^{10'}$ としては、最も好ましくは $SO_2 N(CH_3)_2$ 又は $SO_2 N(CH_3)C_2H_5$ である。

$CONHR^{14}$ としては、 R^{14} が炭素原子数1～8のアルキル基又は無置換もしくは置換基として炭素原子数1～4のハロアルキル基を有するフェニル基及びフェニルスルホニル基であるものを挙げることができ；アルキル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状の炭素原子数が1～6のもの、さらに好ましくは炭素原子数が1～4のものである。

$CSNHR^{15}$ としては、 R^{15} が炭素原子数1～4のアルキル基又はフェニル基であるものを挙げることができ；アルキル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のもの、さらに好ましくは CH_3 である。

$A^1 COOR^{10}$ としては、最も好ましくは CH_2COOCH_3 である。

$\text{COA}^2 \text{R}^{16}$ としては、 A^2 が炭素原子数1～10のアルキレン基であり、 R^{16} が炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数2～5のアルキルカルボニルオキシ基、ハロゲン原子、イミダゾール基、炭素原子数2～5のアルキルカルボニルアミノ基又はピリジル基であるものを挙げることができる。

R^{16} におけるアルコキシ基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のものであり、さらに好ましくは OCH_3 である。

R^{16} におけるアルキルチオ基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のものであり、さらに好ましくは SCH_3 である。

R^{16} におけるアルキルカルボニルオキシ基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のものであり、さらに好ましくは OCOCH_3 である。

R^{16} におけるハロゲン原子としては、塩素原子、ヨウ素原子、臭素原子、フッ素原子などを挙げることができるが、好ましくは塩素原子である。

R^{16} におけるアルキルカルボニルアミノ基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のものであり、さらに好ましくは NHCOCH_3 である。

$\text{CONR}^{10}\text{R}^{10'}$ としては、最も好ましくは $\text{CON}(\text{CH}_3)_2$ である。

CSSR^{10} としては、最も好ましくは CSSCH_3 である。

炭素原子数1～8のアルキル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状の炭素原子数が1～6のものを挙げることができるが、さらに好ましくは炭素原子数が1～4のものである。

炭素原子数2～5のアルケニル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが、好ましくはアリル基である。

炭素原子数2～5のアルキニル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができる。

炭素原子数3～8のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基を挙げることができる。

$\text{A}^1 \text{OR}^{10}$ としては、最も好ましくは $\text{CH}_2 \text{OC}_2\text{H}_5$ である。

R^5 としては、水素原子、 COOR^{17} 、 COR^{18} 、 $\text{SO}_2 \text{R}^{13}$ 、 COA^1

R^{19} 、炭素原子数1～8のアルキル基、 $COCOOR^{10}$ 、 $SCR^{20}R^{20}R^{20}$ 、 $SNR^{21}R^{21}$ 、 A^1OR^{21} 、 $CH_2OA^1OR^{10}$ 、ホルミル基、 $SNR^{10}COOR^{21}$ 、 $SNR^{10}A^1COOR^{10}$ 、炭素原子数1～4のハロアルキル基、ベンジル基、 A^1SR^{15} などを挙げることができる。

$COOR^{17}$ としては、 R^{17} が炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、フェニル基又はベンジル基であるものを挙げることができる。

R^{17} におけるアルキル基としては、好ましくは炭素原子数1～6の直鎖状又は分岐状のもの、さらに好ましくは炭素原子数1～4のものであり；アルケニル基としては、好ましくは $CH_2CH=CH_2$ である。

COR^{18} としては、 R^{18} が炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、フェニル基、炭素原子数2～5のアルケニル基又はピリジル基であるものを挙げることができる。

R^{18} におけるアルキル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状の炭素原子数が1～6のもの、さらに好ましくは炭素原子数1～4のものであり；シクロアルキル基としては、好ましくは炭素原子数が3～6のものであり、さらに好ましくは炭素原子数が3のものであり；フェニル基としては、好ましくは無置換又は置換基として2又は4位にハロゲン原子を有するものが挙げられる。

SO_2R^{13} としては、最も好ましくは SO_2CF_3 、 SO_2CH_3 である。

COA^1R^{19} としては、 R^{19} が炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基又は $COOR^{10}$ であるものを挙げることができる。

R^{19} におけるアルコキシ基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のものであり、さらに好ましくは OCH_3 であり；アルキルチオ基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のものであり、さらに好ましくは SCH_3 であり； $COOR^{10}$ では、好ましくは $COOC_2H_5$ である。

炭素原子数1～8のアルキル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状の炭素原子数が1～6のもの、さらに好ましくは炭素原子数1～4のものである。

$COCOOR^{10}$ としては、最も好ましくは $COCOOCH_3$ である。

$SCR^{20}R^{20}R^{20}$ としては、 R^{20} が相異なってもよい塩素原子、ヨウ素原子、

臭素原子又はフッ素原子であるものであり、好ましくはSCC1₃である。

$SNR^{21}R^{21'}$ としては、 R^{21} 及び $R^{21'}$ が相異なってもよい炭素原子数1～8のアルキル基であるものであり；アルキル基は、好ましくは直鎖状又は分岐状の炭素原子数が1～6のもの、さらに好ましくは炭素原子数1～4のものであり、最も好ましくは $SN(n-C_4H_9)_2$ である。

A^1OR^{21} としては、 A^1 は CH_2 、 $(CH_2)_2$ が好ましく； R^{21} は好ましくは直鎖状又は分岐状の炭素原子数が1～6のもの、さらに好ましくは炭素原子数1～4のものであり、最も好ましくは CH_2OCH_3 、 $CH_2O(C_3H_7-i)$ 、 $CH_2O(C_4H_9-n)$ 又は $CH_2OC_2H_5$ である。

$CH_2OA^1OR^{10}$ としては、最も好ましくは $CH_2OC_2H_4OCH_3$ である。

$SNR^{10}COOR^{21}$ としては、最も好ましくは $SN(CH_3)COOC_4H_9$ 、 $SN(i-C_3H_7)COOC_2H_5$ 又は $SN(CH_3)COOC_2H_5$ である。

$SNR^{10}A^1COOR^{10'}$ としては、最も好ましくは $SN(i-C_3H_7)C_2H_4COOC_2H_5$ である。

炭素原子数1～4のハロアルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げることができるが；最も好ましくは CH_2CH_2F 、 CH_2CH_2Br 又は CH_2CH_2Cl である。

A^1SR^{15} としては、 A^1 が炭素原子数1～4のアルキレンであって、 R^{15} がフェニル基又は炭素原子数1～4のアルキル基であるものを挙げることができるが； A^1 としては、 CH_2 、 $(CH_2)_2$ が好ましい。

R^{15} における、アルキル基としては CH_3 が好ましい。

A^1SR^{15} として最も好ましいものは、 CH_2CH_2SPh 、 CH_2SPh 又は CH_2SCH_3 である。

$R^{5'}$ と $R^{6'}$ とは、Nと共に連結して4～8員環を形成することができるが、好ましくは5員環であり、さらに好ましくはコハク酸イミドを形成したものが挙げられる。

$R^{7'}$ としては、炭素原子数1～4のアルキル基、水素原子、フェニル基などを挙げることができる。

アルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げるができるが、好ましくは CH_3 、 C_2H_5 が挙げられる。

$\text{R}^{8'}$ としては、炭素原子数1～4のアルキル基、水素原子などを挙げるができる。

アルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げるができるが、好ましくは CH_3 、 C_2H_5 である。

$\text{R}^{9'}$ としては、炭素原子数1～4のアルキル基、フェニル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、 CHO 、 COR^{10} 、水素原子などを挙げるができるが；化合物(1B^{''})では、好ましくはアルキル基、フェニル基又はアルキニル基であり；化合物(1B^{'''})では、好ましくはアルキル基、 CHO 、 COR^{10} 又は水素原子である。

アルキル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げるができるが；好ましくは CH_3 又は C_2H_5 である。

アルキニル基としては、直鎖状又は分岐状のものを挙げるができるが；好ましくは $\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$ である。

COR^{10} としては、最も好ましくは COCH_3 である。

Xとしては、S、SO、 SO_2 、O、 NR^{22} などを挙げるができるが；化合物(1B^{''})及び化合物(1B^{'''})では、好ましくはSである。

NR^{22} としては、 R^{22} が炭素原子数2～5のアルキルカルボニル基、ホルミル基、水素原子又は炭素原子数1～4のアルキル基であるものを挙げることができ；アルキルカルボニル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のものであり、さらに好ましくは COCH_3 であり；アルキル基としては、好ましくは直鎖状又は分岐状のものであり、さらに好ましくは CH_3 である。

化合物(1B)には、幾何異性体及びその混合物も含まれる。

化合物(1B)としては、前記の各種の置換基を組み合わせたものを挙げるができるが、薬効の面から好ましいものは、次の通りである。

- (1) $\text{R}^{1'}$ がフェニル基であり、 $\text{R}^{2'}$ 及び $\text{R}^{3'}$ が水素原子であり、 $\text{R}^{4'}$ が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $\text{R}^{5'}$ と $\text{R}^{6'}$ がNと共に連結して4～8員環を形成し、XがSである化合物(1B^{''})。

- (2) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (3) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^3 が炭素原子数1～4のアルキル基であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (4) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 が炭素原子数1～4のアルキル基であり、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (5) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数2～5のアルケニル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (6) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数3～8のシクロアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (7) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数2～5のアルキニル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (8) $R^{1''}$ 及び R^4 がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (9) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 がベンジル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (10) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～4のハロアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (11) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 $R^2 \sim R^4$ 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。
- (12) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が A^1OR^{10} であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSである化合物(1B')。

- (13) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が COA^1OR^{10} であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{11}$ であり、 X が S である化合物(1B')。
- (14) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 、 $R^{5'}$ 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 X が S である化合物(1B')。
- (15) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 、 $R^{5'}$ 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～4のハロアルキル基であり、 X が S である化合物(1B')。
- (16) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が COR^{12} であり、 X が S である化合物(1B')。
- (17) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $CONHR^{14}$ であり、 X が S である化合物(1B')。
- (18) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が COA^2R^{16} であり、 X が S である化合物(1B')。
- (19) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $CSSR^{10}$ であり、 X が S である化合物(1B')。
- (20) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ がホルミル基であり、 X が S である化合物(1B')。
- (21) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数2～6のハロアルケニル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{11}$ であり、 X が S である化合物(1B')。
- (22) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が SO_2NHR^{10} であり、 X が S である化合物(1B')。

- (23) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 X が S である化合物(1B')。
- (24) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～4のハロアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 X が S である化合物(1B')。
- (25) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{5'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{6'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 X が S である化合物(1B')。
- (26) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が A^1OR^{10} であり、 $R^{6'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 X が S である化合物(1B')。
- (27) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が COR^{18} であり、 X が S である化合物(1B')。
- (28) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{5'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{6'}$ が COR^{18} であり、 X が S である化合物(1B')。
- (29) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が COR^{12} であり、 $R^{6'}$ が COR^{18} であり、 X が S である化合物(1B')。
- (30) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ 及び $R^{6'}$ が SO_2R^{13} であり、 X が S である化合物(1B')。
- (31) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{5'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{6'}$ が SO_2R^{13} であり、 X が S である化合物(1B')。
- (32) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{5'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{6'}$ が COA^1R^{19} であり、 X が S である化合物(1B')。

ある化合物 (1B')。

- (33) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が炭素原子数 1～4 のアルキル基であり、X が S である化合物 (1B')。
- (34) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が COR^{12} であり、 $R^{6'}$ が炭素原子数 1～4 のアルキル基であり、X が S である化合物 (1B')。
- (35) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 , R^3 及び $R^{5'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{6'}$ が $COCOR^{10}$ であり、X が S である化合物 (1B')。
- (36) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が $SCR^{20}R^{20}$ であり、X が S である化合物 (1B')。
- (37) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が $SNR^{21}R^{21}$ であり、X が S である化合物 (1B')。
- (38) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が CH_2OR^{10} であり、X が S である化合物 (1B')。
- (39) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が $CH_2OA^1OR^{10}$ であり、X が S である化合物 (1B')。
- (40) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ がホルミル基であり、X が S である化合物 (1B')。
- (41) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 , R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、X が SO である化合物 (1B')。
- (42) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 , R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭

素原子数3～8のシクロアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSOである化合物(1B')。

(43) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～4のハロアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSOである化合物(1B')。

(44) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 が炭素原子数1～4のアルキル基であり、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSOである化合物(1B')。

(45) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が COR^{12} であり、XがSOである化合物(1B')。

(46) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ がホルミル基であり、XがSOである化合物(1B')。

(47) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 、 $R^{5'}$ 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、XがSOである化合物(1B')。

(48) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSOである化合物(1B')。

(49) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が COR^{12} であり、 $R^{6'}$ が COR^{18} であり、XがSOである化合物(1B')。

(50) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSO₂である化合物(1B')。

(51) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 が炭素原子数1～4のアルキル基であり、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、XがSO₂である化合物(1B')。

- (52) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～4 のハロアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 X が SO_2 である化合物 (1B')。
- (53) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 X が SO_2 である化合物 (1B')。
- (54) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が COR^{18} であり、 X が SO_2 である化合物 (1B')。
- (55) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が COR^{12} であり、 X が SO_2 である化合物 (1B')。
- (56) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が COR^{12} であり、 $R^{6'}$ が COR^{18} であり、 X が SO_2 である化合物 (1B')。
- (57) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 、 R^3 及び $R^{6'}$ が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～4 のハロアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 X が O である化合物 (1B')。
- (58) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が $SNR^{10}COOR^{21}$ であり、 X が S である化合物 (1B')。
- (59) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が $SNR^{10}A^1COOR^{10'}$ であり、 X が S である化合物 (1B')。
- (60) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が炭素原子数 1～4 のハロアルキル基であり、 X が S である化合物 (1B')。
- (61) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 R^4 が炭素原子数 1～8 のアルキル基であり、 $R^{5'}$ が $COOR^{1'}$ であり、 $R^{6'}$ が A^1SR^{15}

であり、XがSである化合物(1B')。

(62) R^{1'}がフェニル基であり、R²及びR³が水素原子であり、R⁴が炭素原子数1～8のアルキル基であり、R^{5'}がCOR¹²であり、R^{6'}がA¹OR²¹であり、XがSである化合物(1B')。

(63) R^{1'}がフェニル基であり、R²及びR³が水素原子であり、R⁴が炭素原子数1～8のアルキル基であり、R^{5'}がCOR¹²であり、R^{6'}がベンジル基であり、XがSである化合物(1B')。

(64) R^{1'}がフェニル基であり、R²、R³及びR^{6'}が水素原子であり、R⁴が炭素原子数1～8のアルキル基であり、R^{5'}がCOR¹²であり、R^{6'}がSO₂NHCH₂Phであり、XがSである化合物(1B')。

(65) R^{1'}がフェニル基であり、R²、R³及びR^{6'}が水素原子であり、R⁴がシアノハロアルキル基であり、R^{5'}がCOOR¹¹であり、XがSである化合物(1B')。

(66) R^{1'}がフェニル基であり、R²、R³、R^{5'}及びR^{6'}が水素原子であり、R⁴が炭素原子数1～8のアルキル基であり、XがSO₂である化合物(1B')。

(67) R^{1'}がフェニル基であり、R²及びR³が水素原子であり、R⁴が炭素原子数1～6のアルキル基であり、R⁷～R⁹が炭素原子数1～4のアルキル基であり、XがSである化合物(1B'')。

(68) R^{1'}がフェニル基であり、R²、R³及びR⁷が水素原子であり、R⁴が炭素原子数1～6のアルキル基であり、R⁸及びR⁹が炭素原子数1～4のアルキル基であり、XがSである化合物(1B'')。

(69) R^{1'}がフェニル基であり、R²及びR³が水素原子であり、R⁴が炭素原子数1～4のハロアルキル基であり、R⁷～R⁹が炭素原子数1～4のアルキル基であり、XがSである化合物(1B'')。

化合物(1B)のさらに好ましいものとしては、前記した好ましい各置換基を有するものを挙げることができる。

具体的な化合物(1B)としては、後述の表5中に記載した化合物：(1B'-1)～(1B'-17)、(1B'-28)、(1B'-29)、(1B'-32)、(1B'-35)、(1B'-38)～(1B'-43)、

(1B'-45)~(1B'-48), (1B'-50), (1B'-52), (1B'-53), (1B'-55), (1B'-58), (1B'-63), (1B'-64), (1B'-68), (1B'-73), (1B'-75), (1B'-78), (1B'-80)~(1B'-83), (1B'-89), (1B'-95), (1B'-98), (1B'-100), (1B'-107), (1B'-123), (1B'-134)~(1B'-141), (1B'-147), (1B'-164), (1B'-168), (1B'-169), (1B'-171), (1B'-172), (1B'-174)~(1B'-176), (1B'-178)~(1B'-180), (1B'-185)~(1B'-188), (1B'-190), (1B'-192), (1B'-195), (1B'-196), (1B'-199)~(1B'-233), (1B'-235)~(1B'-255), (1B'-266), (1B'-273), (1B'-275), (1B'-281), (1B'-283)~(1B'-286), (1B'-293), (1B'-303)~(1B'-306), (1B'-319), (1B'-321), (1B'-322), (1B'-334)~(1B'-348), (1B'-350)~(1B'-362), (1B'-365)~(1B'-387), (1B'-389), (1B'-390)~(1B'-427), (1B''-1), (1B''-2), (1B''-13), (1B''-20), (1B''-37)及び(1B''-38)を挙げることができる。

式(2B)において、 R^4 が $R^{4'}$ で示される化合物(2B')としては、前記に記載した置換基を組み合わせたものを挙げることができるが、好ましくは次の通りである。

- (a) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ が炭素原子数1~8のアルキル基であり、XがSである化合物。
- (b) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ が炭素原子数1~4のアルキル基であり、XがSOである化合物。
- (c) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ が炭素原子数1~4のアルキル基であり、XがSO₂である化合物。
- (d) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ が炭素原子数2~5のアルケニル基であり、XがSである化合物。
- (e) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ が炭素原子数3~8のシクロアルキル基であり、XがSである化合物。
- (f) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ がベンジル基であり、XがSである化合物。
- (g) $R^{1''}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ が炭素原子数1~4のハロアルキル基であり、XがSである化合物。

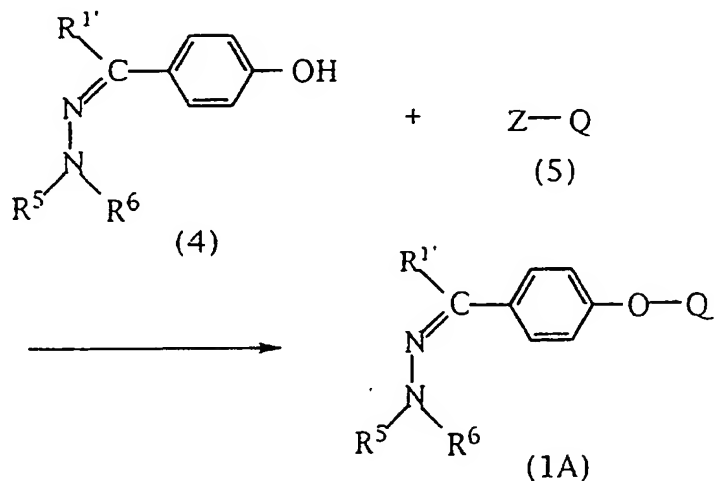
- (h) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ が炭素原子数1～4のハロアルキル基であり、 X がOである化合物。
- (i) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ が炭素原子数1～4のアルキル基であり、 X がNHである化合物。
- (j) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ がCSO-（炭素原子数1～4のアルキル基）であり、 X がSである化合物。
- (k) $R^{1'}$ がフェニル基であり、 R^2 及び R^3 が水素原子であり、 $R^{4'}$ が炭素原子数2～5のアルキニル基であり、 X がSである化合物。

具体的な化合物(2B')としては、後述の表4に記載した化合物(2B-1)～(2B-79)などを挙げることができる。

化合物(1A)は、以下に示す製造法1、2、3又は4によって合成することができる。

製造法1：

次に示すように、化合物(4)と化合物(5)とを溶媒中で塩基存在下に反応させることによって行う。



式中、 $R^{1'}$ 、 R^5 、 R^6 、 Z 及び Q は前記と同義である；

溶媒の種類としては、本反応に直接関与しないものであれば特に限定されず、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、メチルナフタリン、石油エーテル、リグロイン、ヘキサン、クロルベンゼン、ジクロルベンゼン、塩化メチレン、クロロホルム、ジクロルエタン、トリクロルエチレン、シクロヘキサンのような塩素

化された又はされていない芳香族、脂肪族、脂環式の炭化水素類；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのようなエーテル類；アセトン、メチルエチルケトンなどのようなケトン類；メタノール、エタノール、エチレングリコールなどのようなアルコール類；N，N-ジメチルホルムアミド，N，N-ジメチルアセトアミドなどのようなアミド類；アセトニトリル，プロピオニトリルなどのようなニトリル類；トリエチルアミン，ピリジン，N，N-ジメチルアニリン，1，8-ジアザビシクロ〔5.4.0〕ウンデカ-7-エンなどのような有機塩基；1，3-ジメチル-2-イミダゾリジノン；ジメチルスルホキシド；前記溶媒の混合物を挙げることができる。

溶媒の使用量は、化合物（4）が1～80重量%になるようにして使用することができるが；3～70重量%が好ましい。

塩基の種類としては、特に限定されず、例えば、トリエチルアミン，ピリジン，4-N，N-ジメチルアミノピリジン，N，N-ジメチルアニリン，1，8-ジアザビシクロ〔5.4.0〕ウンデカ-7-エンなどの有機塩基；ナトリウムメトキシド，ナトリウムエトキシドなどのアルカリ金属アルコキシド類；水素化ナトリウム，ナトリウムアミド，水酸化ナトリウム，水酸化カリウム，炭酸ナトリウム，炭酸水素ナトリウム，炭酸カリウムなどの無機塩基を挙げることができる。

塩基の使用量は、化合物（4）に対して0.001～5倍モルである。

反応温度は、特に限定されないが、室温から使用する溶媒の沸点以下の温度範囲内であり；沸点以下の温度が好ましい。

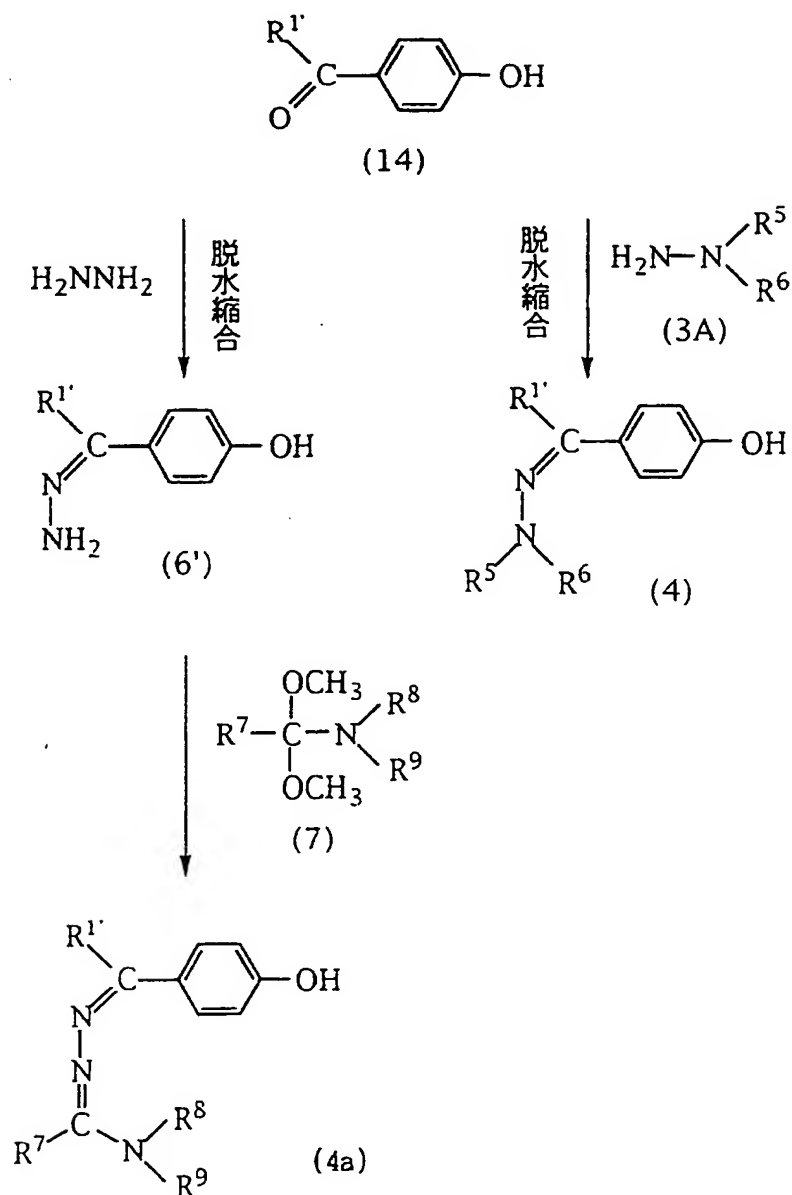
反応時間は、前記の濃度，温度によって変化するが；通常0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物（4）に対して化合物（5）が0.5～2倍モルであるが；好ましくは0.8～1.5倍モルである。

化合物（4）は、次に示すように、通常、化合物（14）と化合物（3A）とを脱水縮合することによって合成することができる。

或いは、化合物（4a）（化合物（1）において、 R^5 と R^6 とがNと共に $-N=C(R^7)NR^8R^9$ を形成した化合物（1a）の合成に使用する化合物）の合成

は、化合物 (14) とヒドラジンとを脱水縮合して化合物 (6') を製造し、これを化合物 (7) と反応させることによって行うことができる。



式中、 $\text{R}^{1'}$ 、 $\text{R}^5 \sim \text{R}^9$ は、前記と同義である；

化合物 (7) は、アミドアセタール類であり、Ann., 641, 1 (1961) に記載された方法に準じて合成することができるし、市販品として使用できるものもある。

化合物(7)は、後述の表2に示した化合物1A-1~5, 7, 10, 13~18, 25, 28, 46, 56に対応した、置換基 $R^7 \sim R^9$ からなる化合物(7)を挙げることができる(化合物(7)₁~(7)₅, (7)₇, (7)₁₀, (7)₁₃~(7)₁₈, (7)₂₅, (7)₂₈, (7)₄₆, (7)₅₆と称する。例えば、化合物(7)₁は、化合物(7)で示される式における $R^7 \sim R^9$ がメチル基である。)

化合物(7)は、例えば、 R^5 がHで、 R^6 がアルコキシカルボニル基である場合には、J. fur Practische Chemie [2] 70, 276に記載された方法に準じて合成することができるし、また市販品として使用できるものもある。

化合物(7)としては、後述の表2に示した化合物1A-1~56に対応した置換基 R^5 及び R^6 からなる化合物(7)を挙げることができる(化合物(7)₁~(7)₅₆と称する。例えば、化合物(7)₁は、化合物(7)で示される式において、 R^5 と R^6 とがNと共に $-N=C(CH_3)N(CH_3)_2$ を形成したものである。)

化合物(14)は、例えば、対応するカルボン酸フェノールエステルから、フリーズ転移反応によって製造することができるし、また市販品として使用できるものもある。

化合物(4)としては、後述の表2に示した化合物1A-1~56に対応した置換基 $R^{1'}$ 、 R^5 、 R^6 からなる化合物(4)を挙げることができる(化合物(4)₁~(4)₅₆と称する。例えば、化合物(4)₁は、化合物(4)で示される式における $R^{1'}$ が4-クロロフェニル基、 R^5 と R^6 とがNと共に $-N=C(CH_3)N(CH_3)_2$ を形成したものである。)

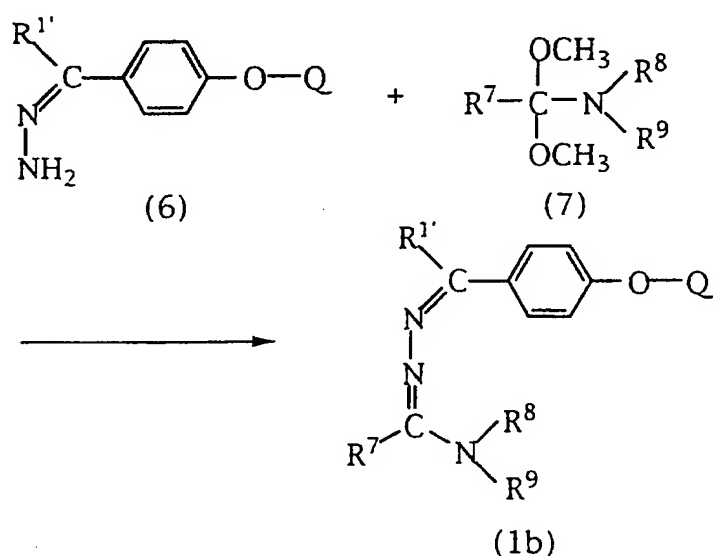
化合物(5)は、例えば、Zがアルキルスルホニル基の場合には、J. Org. Chem., 28, 2945 (1962)に記載された、対応したアルキルチオヘテロ環化合物を酸化する方法などによって製造することができる。

化合物(5)としては、後述の表2に示した化合物1A-1~56に対応した置換基Qからなる化合物(5)を挙げることができる(化合物(5)₁~(5)₅₆と称する。例えば、化合物(5)₁は、化合物(5)で示される式におけるQが

5-クロロ-6-メチル-4-ピリミジニル基である。))。

製造法2:

化合物(1b) (化合物(1A)において、 R^5 と R^6 とがNと共に $-N=C R^7 N R^8 R^9$ を形成する場合 ($R^7 \sim R^9$ は、前記と同義である。)) の場合には、次に示すように、化合物(6)と化合物(7)とを無溶媒もしくは溶媒中で反応させることによって行う。



式中、 $R^{1'}$ 、 $R^7 \sim R^9$ 及びQは、前記と同義である；

溶媒の種類としては、本反応に直接関与しないものであれば特に限定されず、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、メチルナフタリン、石油エーテル、リグロイン、ヘキサン、クロルベンゼン、ジクロルベンゼン、塩化メチレン、クロロホルム、ジクロルエタン、トリクロルエチレン、シクロヘキサンのような塩素化された又はされていない芳香族、脂肪族、脂環式の炭化水素類；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのようなエーテル類；メタノール、エタノール、エチレングリコールなどのようなアルコール類又はその含水物；N，N-ジメチルホルムアミド，N，N-ジメチルアセトアミドなどのようなアミド類；アセトニトリル，プロピオニトリルなどのようなニトリル類；トリエチルアミン，ピリジン，N，N-ジメチルアニリン，1，8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデカ-7-エンなどのような有機塩基；1，3-ジメチル-

2-イミダゾリジノン；ジメチルスルホキシド；前記溶媒の混合物を挙げることができる。

溶媒の使用量は、化合物（6）が5～80重量%になるようにして使用することができ、10～70重量%が好ましい。

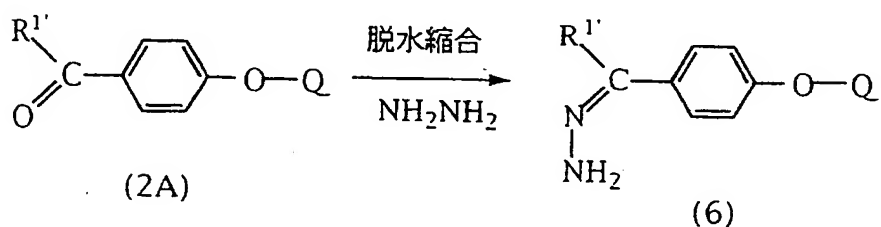
反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物（6）に対して化合物（7）が0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

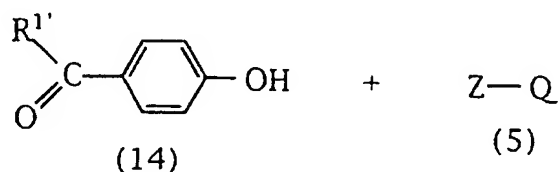
また、必要に応じて、反応の触媒として、例えば、塩酸、硫酸、硝酸などの鉱酸；蟻酸、酢酸、プロピオン酸、メタンスルホン酸、ベンゼンスルホン酸、p-トルエンスルホン酸などの有機酸；ピリジン塩酸塩、トリエチルアミン塩酸塩などのアミン類の酸付加塩などを化合物（6）に対して0.001～1モル用いることができる。

化合物（6）は、通常の水ドラゾンの合成と同様に、次に示すように化合物（2A）と水ドラジンとを反応させることによって製造することができる。

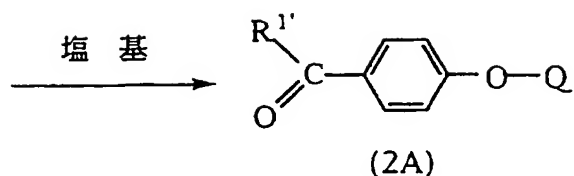


式中、R^{1'}及びQは、前記と同義である；

化合物（2A）は、次に示すように、化合物（14）と化合物（5）とを反応させることによって製造することができる。



43



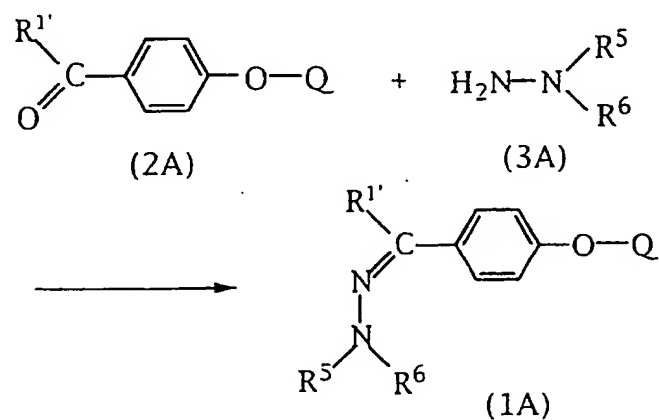
式中、 $\text{R}^{1'}$ 、 Z 及び Q は、前記と同義である；

化合物(2A)としては、後述の表2に示した化合物1A-1～56に対応した置換基 $\text{R}^{1'}$ 及び Q からなる化合物(2A)を挙げることができる(化合物(2A)₁～(2A)₅₆と称する。例えば、化合物(2A)₁は、化合物(2A)で示される式における $\text{R}^{1'}$ が4-クロロフェニル基、 Q が5-クロロ-6-メチル-4-ピリジニル基である。)

このようにして得られた化合物(2A)の中で、化合物(2A') (例えば、後述の表1に記載した化合物(2A))は、新規物質である。

製造法3：

次に示すように、化合物(2A)と化合物(3A)とを無溶媒もしくは溶媒中で反応させることによって行う。



式中、 $\text{R}^{1'}$ 、 $\text{R}^5 \sim \text{R}^6$ 及び Q は、前記と同義である；

溶媒の種類としては、製造法2に記載したものと同一ものを使用することができる。

溶媒の使用量は、化合物(2A)が0.5～80重量%になるようにして使用することができるが、0.5～70重量%が好ましい。

反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

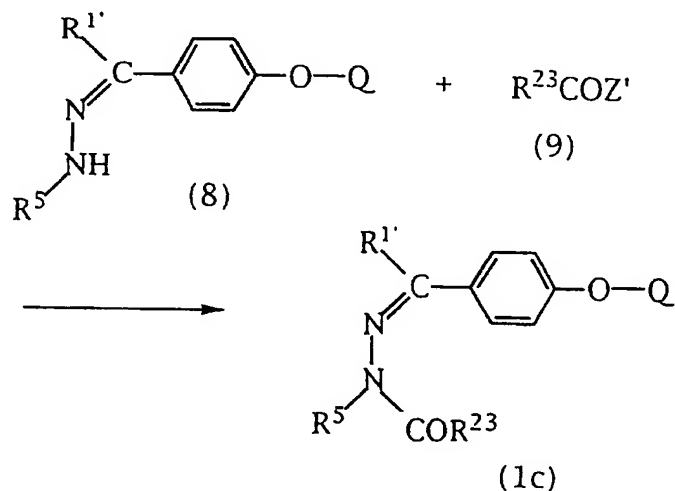
反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(2A)に対して化合物(7)が0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

また、必要に応じて、反応の触媒として、製造法2に記載したもの他に、三弗化硼素-エーテル複合体などのルイス酸を、化合物(2A)に対して0.001～1モル使用することができる。

製造法4：

化合物(1c) (化合物(1A)において、R⁶が炭素数2～5個のアルコキシカルボニル基又は炭素数2～5個のアシル基を表す場合(R^{1'}及びR⁵は、前記と同義である。))の場合には、次に示すように、化合物(8)と化合物(9)とを無溶媒もしくは溶媒中で反応させることによって行う。



式中、R^{1'}、R⁵、R²³、Z' 及びQは、前記と同義である；

溶媒の種類としては、製造法1に記載したものと同一ものを使用することができる。

溶媒の使用量は、化合物(8)が0.5～80重量%になるようにして使用することができるが、0.5～70重量%が好ましい。

反応温度は、特に限定されないが、通常0～200℃の温度範囲内であり、好

ましくは0～100℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

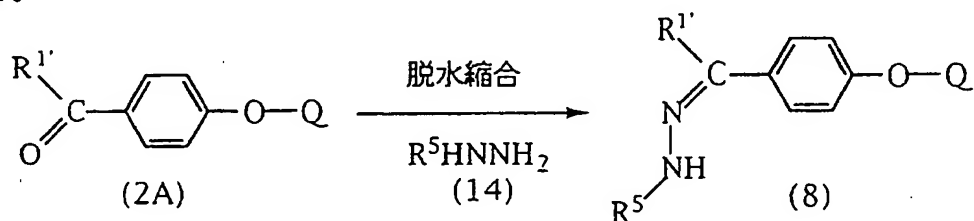
原料化合物の使用量は、化合物(8)に対して化合物(9)が通常0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

また、必要に応じて、塩基を使用することができる。

塩基の種類としては、特に限定されず、例えば、トリエチルアミン、ピリジン、4-N,N-ジメチルアミノピリジン、N,N-ジメチルアニリン、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデカ-7-エンなどの有機塩基、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシドなどのアルカリ金属アルコキシド類、水素化ナトリウム、ナトリウムアミド、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウムなどの無機塩基を挙げることができる。

塩基の使用量は、化合物(8)に対して0.001～5倍モルである。

化合物(8)は、通常の水ドラゾンの合成と同様に、次のように、化合物(2A)とヒドラジン化合物(14)とを反応させることによって製造することができる。



式中、R^{1'}、R⁵及びQは、前記と同義である；

化合物(8)としては、後述の表2に示した化合物1A-8, 9, 11, 12, 19～24, 26, 27, 29～45, 47, 48, 50～55に対応した置換基R^{1'}、R⁵及びQからなる化合物(8)を挙げることができる(化合物(8)₈, (8)₉, (8)₁₁, (8)₁₂, (8)₁₉～(8)₂₄, (8)₂₆, (8)₂₇, (8)₂₉～(8)₄₅, (8)₄₇, (8)₄₈, (8)₅₀～(8)₅₅と称する。例えば、化合物(8)₈は、化合物(8)で示される式におけるR^{1'}が4-クロロフェニル基、R⁵が水素原子、Qが4,6-ジメチル-2-ピリミジニ

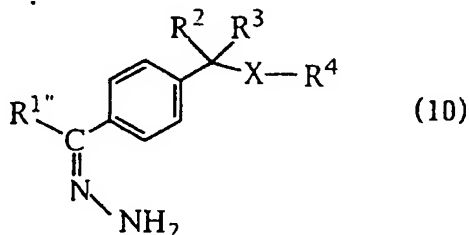
ル基である。) 。

化合物 (9) は、市販品を使用することができるし、文献公知の方法で製造することができる。

化合物 (9) としては、後述の表 2 に示した化合物 1 A-8, 9, 11, 12, 19~24, 26, 27, 29~45, 47, 48, 50~55 に対応した置換基 R^6 に記載した R^{23} 部分を有する化合物 (9) を挙げるることができる (化合物 (9)₈, (9)₉, (9)₁₁, (9)₁₂, (9)₁₉~(9)₂₄, (9)₂₆, (9)₂₇, (9)₂₉~(9)₄₅, (9)₄₇, (9)₄₈, (9)₅₀~(9)₅₅ と称する。例えば、化合物 (9)₈ は、化合物 (9) で示される式における R^{23} がエトキシ基である。) 。

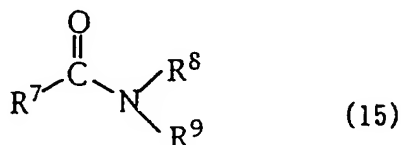
一方、化合物 (1 B) を製造する好ましい態様としては、第 3 及び 7~9 の発明として記載した製造法 5~8 の他に、次の 5 種 (製造法 9~13) の方法を挙げることができる。

製造法 9 は、次式 (10) :



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 及び X は、前記と同義である ;
で示される化合物と

次式 (15) :



式中、 $R^7 \sim R^9$ は、前記と同義である ;
で示される化合物とを反応させることによって、後記化合物 (1b'') を製造する方法である。

製造法 10 は、化合物 (10) と前記式 (7) で示される化合物とを反応させることによって、化合物 (1b'') を製造する方法である。

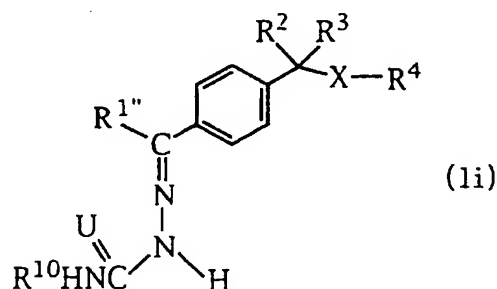
製造法 11 は、化合物 (10) と

次式 (16) :



式中、 R^{10} は、前記と同義であり； U は酸素原子又は硫黄原子を表す；
で示される化合物とを反応させることによって、

次式 (1i) :



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 R^{10} 、 U 及び X は、前記と同義である；
で示される化合物を製造する方法である。

製造法 12 は、化合物 (10) と

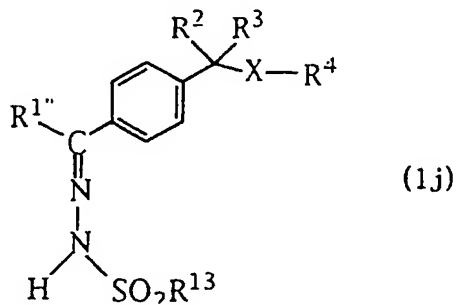
次式 (17) :



式中、 R^{13} は前記と同義であり； Q' はハロゲン原子、 $OSO_2 R^{12}$ 又は
 OH を表す；

で示される化合物とを反応させることによって、

次式 (1j) :



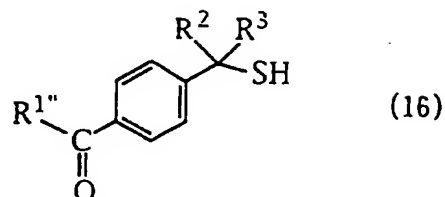
式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 R^{13} 及び X は、前記と同義である；
で示される化合物を製造する方法である。

化合物 (2B) の合成

前記記載の式 (2B) で示される中間体を合成する好ましい態様としては、次

の5種（合成法1～5）の方法を挙げることができる。

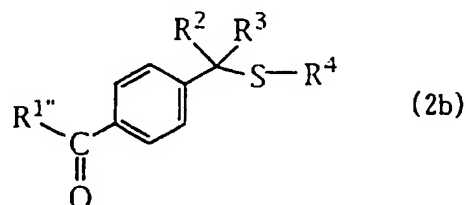
合成法1は、次式(16)：



式中、 $\text{R}^{1''}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^3$ は、前記と同義である；

で示される化合物とハロゲン化アルキルとを反応させることによって、

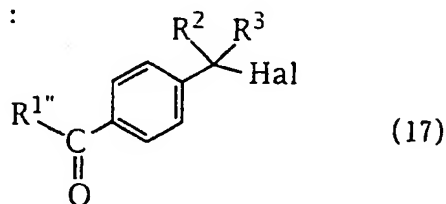
次式(2b)：



式中、 $\text{R}^{1''}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^4$ は、前記と同義である；

で示される化合物を合成する方法である。

合成法2は、次式(17)：

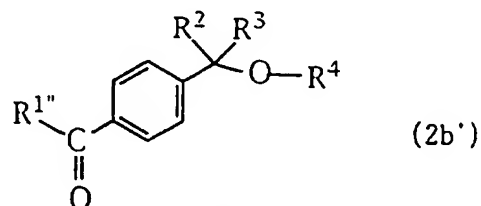


式中、 $\text{R}^{1''}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^3$ は、前記と同義であり；Halはハロゲン原子を表わす；

で示される化合物とチオール類とを反応させることによって、式(2b)で示される化合物(2B)を合成する方法である。

合成法3は、化合物(17)とアルコール類とを反応させることによって、

次式(2b')：

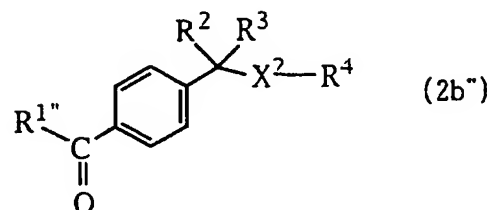


式中、 $\text{R}^{1''}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^4$ は、前記と同義である；

で示される化合物(2B)を合成する方法である。

合成法4は、化合物(17)とアミン類とを反応させることによって、

次式(2b''):

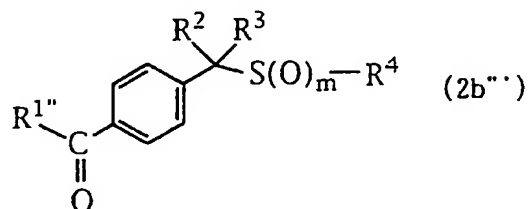


式中、 X^2 は、NH又は NR^{10} を表わし； $\text{R}^{1''}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^4$ 及び R^{10} は、前記と同義である；

で示される化合物(2B)を合成する方法である。

合成法5は、化合物(2b)を酸化剤と反応させることによって、

次式(2b'''):



式中、 $\text{R}^{1''}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^4$ は、前記と同義であり； m は1又は2である；

で示される化合物(2B)を合成する方法である。

以下に化合物(1B)の製造法5～13及び化合物(2B)の合成法1～5について、さらに詳細に説明する。

製造法5:

次に示すように、化合物(2B)と

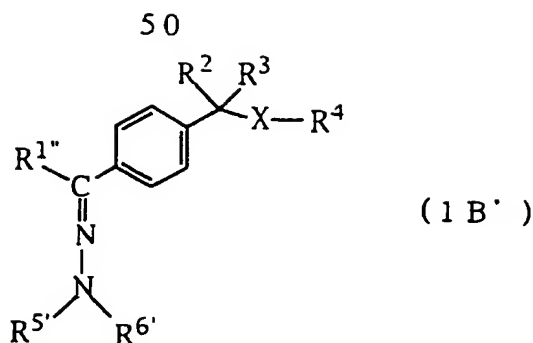
次式(3B):



式中、Yは前記と同義である；

で示される化合物とを溶媒中で脱水縮合させることによって、化合物(1B')

(化合物(1B)において、Yが $\text{NR}^{5'}\text{R}^{6'}$ の場合)を製造する。また、酸性触媒を使用することによって反応を促進することができる。



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 $R^{5'} \sim R^{6'}$ 及びXは、前記と同義である；

溶媒の種類としては、本反応に直接関与しないものであれば特に限定されず、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、メチルナフタリン、石油エーテル、リグロイン、ヘキサン、クロルベンゼン、ジクロルベンゼン、塩化メチレン、クロロホルム、ジクロルエタン、トリクロルエチレン、シクロヘキサンのような塩素化された又はされていない芳香族、脂肪族、脂環式の炭化水素類；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのようなエーテル類；メタノール、エタノール、エチレングリコールなどのようなアルコール類；N，N-ジメチルホルムアミド、N，N-ジメチルアセトアミドなどのようなアミド類；アセトニトリル、プロピオニトリルなどのようなニトリル類；1，3-ジメチル-2-イミダゾリジノン；ジメチルスルホキシド；前記溶媒の混合物を挙げることができる。

溶媒の使用量は、化合物(2B)が1～80重量%であるが；好ましくは1～50重量%である。

酸性触媒の種類としては、例えば、塩酸、硫酸、硝酸などの鉱酸；蟻酸、酢酸、プロピオン酸、メタンスルホン酸、ベンゼンスルホン酸、p-トルエンスルホン酸などの有機酸；ピリジン塩酸塩、トリエチルアミン塩酸塩などのアミン類の酸付加塩；三弗化硼素エーテル複合体などのルイス酸などを挙げることができる。

酸性触媒の使用量は、化合物(2B)に対して0.001～1倍モルである。

反応温度は、特に限定されないが、室温から使用する溶媒の沸点以下の温度範囲内であり、沸点以下の温度が好ましい。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(2B)に対して化合物(3B)が0.5～2倍モルであり、好ましくは0.8～1.5倍モルである。

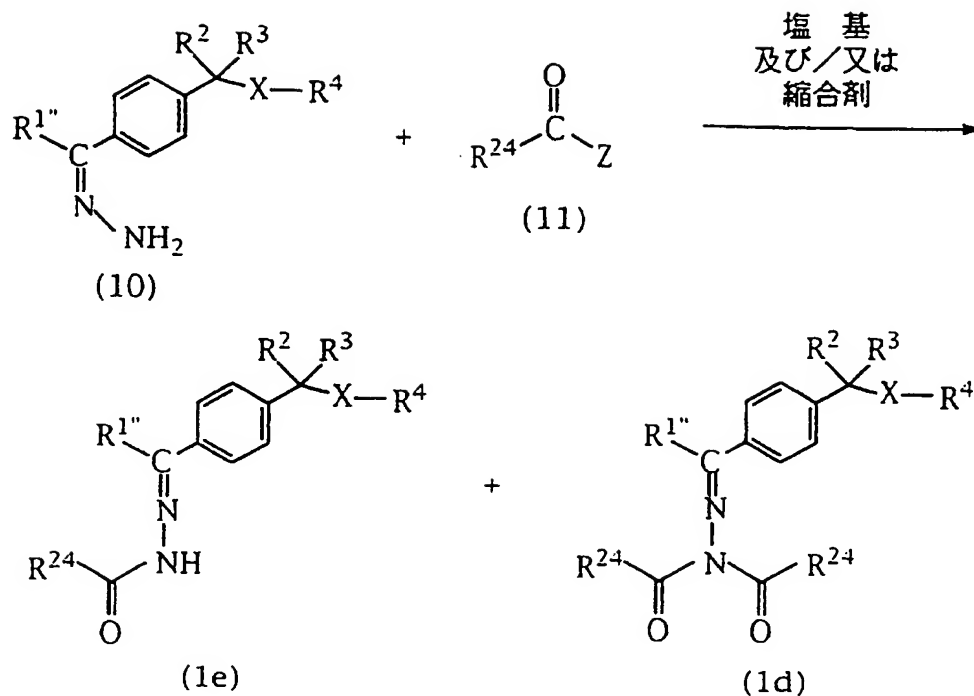
化合物(2B)としては、後述の表5に示した化合物((2B'-1)～(2B'-403)、化合物(2B''-1)～(2B''-48)、化合物(2B'''-1)～(2B'''-27))に対応した置換基 $R^{1'}$ 及び $R^2 \sim R^4$ からなる化合物(2B)を挙げることができる(化合物(2B)_(2B'-1)～(2B)_(2B'-403)、化合物(2B)_(2B''-1)～(2B)_(2B''-48)、化合物(2B)_(2B'''-1)～(2B)_(2B'''-27)と称する。例えば、化合物(2B)_(2B'-1)は、化合物(2B)で示される式における $R^{1'}$ が4-クロロフェニル基、 R^2 と R^3 とが水素原子、 R^4 が CH_3 、XがSである。)

化合物(3B)は、例えば、市販品を使用できないものについては、Chemische Berichte, 47, 2183 (1914)に記載されたヒドラジンと炭酸ジエチルとを反応させる方法、J. Org. Chem., 34, 1713 (1969)に記載されたヒドラジンとイソシアナートとを反応させる方法、又はJ. Am. Chem. Soc., 72, 2762 (1950)に記載されたヒドラジンとジアルキル硫酸とを反応させる方法などによって製造して使用することができる。

化合物(3B)としては、後述の表5に示した化合物((3B'-1)～(3B'-403)、化合物(3B''-1)～(3B''-38)、化合物(3B'''-1)～(3B'''-27))に対応した置換基 $R^{5'}$ 及び $R^{6'}$ からなる化合物(3B)を挙げることができる(化合物(3B)_(3B'-1)～(3B)_(3B'-403)、化合物(3B)_(3B''-1)～(3B)_(3B''-38)、化合物(3B)_(3B'''-1)～(3B)_(3B'''-27)と称する。例えば、化合物(3B)_(3B'-1)は、化合物(3B)で示される式における $R^{5'}$ が $COOC_2H_5$ 、 $R^{6'}$ が水素原子である。)

製造法6:

次に示すように、化合物(10)と化合物(11)とを、塩基および/または縮合剤の存在下に溶媒中で反応させることによって、化合物(1d)及び化合物(1e)を製造する。



式中、 $\text{R}^{1''}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^4$ 、 R^{24} 、 X 及び Z は、前記と同義である；

縮合剤としてはジシクロヘキシルカルボジイミド、塩酸1-エチル-3-(3-ジメチルアミノプロピル)カルボジイミド、カルボニルジイミダゾール、シアノリン酸ジエチルなどをあげることができる。

溶媒の種類としては、非水系のものであれば特に限定されないが、好ましくは、塩化メチレン、クロロホルム、トルエン、ベンゼン、THF、エチルエーテルなどが挙げられる。

溶媒の使用量は、化合物(10)が1～80重量%になるようにして使用することができるが、1～50重量%が好ましい。

化合物(10)と縮合剤とを用いる割合は化合物(11)1モルに対して縮合剤1～2モル、好ましくは1～1.1モルがよい。

反応温度は特に限定されないが、好ましくは0℃～50℃がよい。

塩基の種類としては、特に限定されず、例えば、トリエチルアミン、ピリジン、4-N,N-ジメチルアミノピリジン、N,N-ジメチルアニリン、1,

8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデカ-7-エンなどの有機塩基；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシドなどのアルカリ金属アルコキシド類；ナトリウムアミド、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸水素ナトリウムなどの無機塩基；ブチルリチウム、リチウムジイソプロピルアミド、ビストリメチルシリルリチウムアミドなどを挙げることができる。そしてその使用量は、化合物(11) 1モルに対して1～2モルの割合で加えることができ、好ましくは1～1.2モルがよい。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、0.5～6時間撹拌することによって行うことができる。

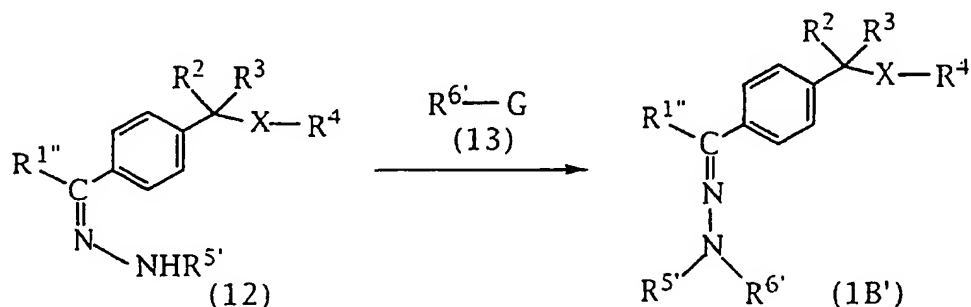
塩基の使用量は、化合物(10)に対して0.001～5倍モルである。

原料化合物の使用量は、化合物(10)に対して化合物(11)が0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

化合物(11)は、例えば、市販品のアセチルクロライド、無水酢酸、ベンゾイルクロライド、クロルギ酸エチル、ニコチン酸、メトキシアセチルクロライドなどを使用することができる。

製造法7：

次に示すように、化合物(12)と化合物(13)とを、塩基の存在下に溶媒中で反応させることによって、化合物(1B')を製造する。



式中、 $R^{1''}$, $R^2 \sim R^4$, $R^{5'} \sim R^{6'}$, X 及び G は、前記と同義である；

溶媒の種類としては、製造法5に記載したもの他に、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類を使用することができる。

溶媒の使用量は、化合物(12)が1～80重量%になるようにして使用することができ、1～50重量%が好ましい。

塩基の種類としては、特に限定されず、例えば、トリエチルアミン、ピリジン、4-N, N-ジメチルアミノピリジン、N, N-ジメチルアニリン、1, 8-ジアザビシクロ[5. 4. 0]ウンデカ-7-エンなどの有機塩基；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシドなどのアルカリ金属アルコキシド類；ナトリウムアミド、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸水素ナトリウムなどの無機塩基；ブチルリチウム、リチウムジイソプロピルアミド、ビストリメチルシリルリチウムアミドなどを挙げることができる。

塩基の使用量は、化合物(12)に対して0. 001～5倍モルである。

反応温度は、特に限定されないが、通常-30℃～200℃の温度範囲内であり、好ましくは0～80℃である。

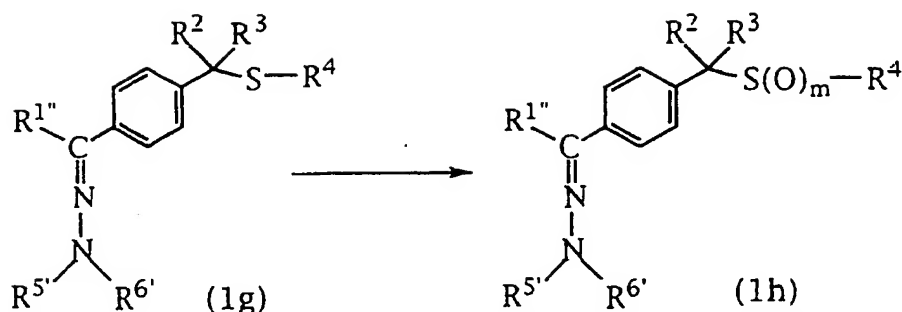
反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0. 1～100時間であり、好ましくは0. 3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(12)に対して化合物(6)が0. 5～50倍モルであり、好ましくは0. 8～10倍モルである。

化合物(6)は、例えば、市販品のアセチルクロライド、ヨウ化メチル、メトキシメチルクロライド、無水酢酸、ベンゾイルクロライド、メトキシアセチルクロライド、クロロアセチルクロライド、メタンスルホンイルクロライド、無水トリフルオロ酢酸、クロロ蟻酸メチル、クロロ蟻酸エチル、クロロ蟻酸フェニル、トリクロロメチルスルフェニルクロライドなどを使用することができる。また、J. Chem. Soc., 1932, 1040などの文献に記載された方法でジスルフィドに塩素又は塩化スルフィルを反応させて得ることができる、スルフェニルクロライドを使用することができる。

製造法8：

次に示すように、化合物(1g)を、酸化剤の存在下に溶媒中で反応させることによって、化合物(1h)（化合物(1)において、Yが NR^5R^6 、XがSO又はSO₂の場合）を製造する。



式中、 $\text{R}^{1''}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^4$ 、 $\text{R}^{5'} \sim \text{R}^{6'}$ 及び m は、前記と同義である；

溶媒の種類としては、製造法5に記載したもの他に、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類を使用することができる。

溶媒の使用量は、化合物(1g)が1～80重量%になるようにして使用することができるが、1～50重量%が好ましい。

酸化剤としては、過酸化水素、過酢酸、過安息香酸、 m -クロル過安息香酸などの過酸類；メタ過ヨウ素酸ナトリウム；ヒドロペルオキシド；オゾン；二酸化セレン；クロム酸；四酸化二窒素；硝酸アシル；ヨウ素； N -ブロムコハク酸イミド；ヨードシルベンゼン；塩化スルフリル；含水シリカゲル；次亜塩素酸セーブチル；オキシソ（アルドリッチ社製のパーオキシモノ硫酸カリウム）などを挙げるができる。

酸化剤の使用量は、化合物(1g)に対して0.01～5倍モルである。

反応温度は、特に限定されないが、通常 $-80 \sim 100^\circ\text{C}$ の温度範囲内であり、好ましくは $-60 \sim 100^\circ\text{C}$ である。

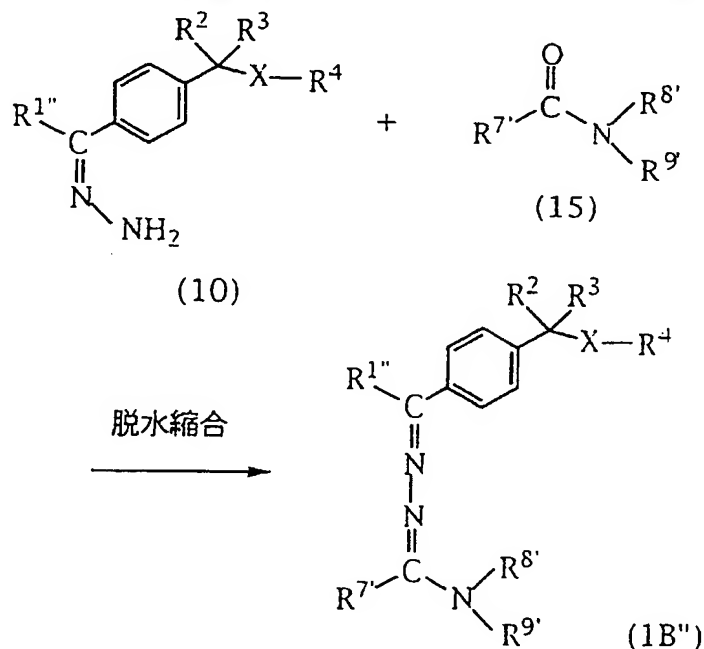
反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.1～24時間である。

化合物(1h)としては、後述の表5に示した化合物((1B'-4), (1B'-5), (1B'-7), (1B'-8), (1B'-10), (1B'-11), (1B'-13), (1B'-14), (1B'-17), (1B'-18), (1B'-20), (1B'-21), (1B'-23), (1B'-24), (1B'-26), (1B'-27), (1B'-29), (1B'-30), (1B'-33), (1B'-34), (1B'-36), (1B'-37), (1B'-39)～(1B'-41), (1B'-43), (1B'-44), (1B'-46)～(1B'-51), (1B'-53), (1B'-54), (1B'-56), (1B'-57), (1B'-59)～(1B'-61), (1B'-63), (1B'-65)～(1B'-67), (1B'-69), (1B'-70), (1B'-76), (1B'-77), (1B'-79), (1B'-80), (1B'-82), (1B'-83),

(1B'-96), (1B'-97), (1B'-99), (1B'-105), (1B'-106), (1B'-108), (1B'-109), (1B'-114), (1B'-115), (1B'-117), (1B'-118), (1B'-137) ~ (1B'-139), (1B'-181) ~ (1B'-184), (1B'-186), (1B'-187), (1B'-206), (1B'-207), (1B'-209), (1B'-214), (1B'-215), (1B'-221), (1B'-243), (1B'-244), (1B'-251) ~ (1B'-253), (1B'-255), (1B'-261), (1B'-262), (1B'-267) ~ (1B'-270), (1B'-272) ~ (1B'-274), (1B'-279), (1B'-280), (1B'-287), (1B'-288), (1B'-291), (1B'-292), (1B'-295), (1B'-296), (1B'-304), (1B'-305), (1B'-307), (1B'-308), (1B'-310), (1B'-311), (1B'-316), (1B'-317), (1B'-339), (1B'-351), (1B'-363), (1B'-364), (1B'-367), (1B'-368), (1B'-383), (1B'-384), (1B'-393), (1B'-398), (1B'-399), (1B'-404), (1B'-405), (1B'-412) ~ (1B'-415), (1B'-421), (1B'-426))などを挙げることができる。

製造法9:

次に示すように、化合物(10)と化合物(15)とを、縮合剤の存在下に無溶媒もしくは溶媒中で反応させることによって、化合物(1B'')を製造する。



式中、 $R^{1''}$, $R^2 \sim R^4$, $R^7 \sim R^9$ 及び X は、前記と同義である；

溶媒の種類としては、製造法1に記載したものと同一ものを使用することができる。

溶媒の使用量は、化合物(10)が1～80重量%になるようにして使用することができ、1～50重量%が好ましい。

縮合剤の種類としては、例えば、塩化トシル、塩化ピバロイルなどの有機塩化物；トリエチルオキシニウムテトラフルオロボレート、四塩化チタンなどのルイス酸；シクロヘキシルカルボジイミド、五塩化リン、ポリリン酸、オキシ塩化リンなどの脱水剤などを挙げることができる。

縮合剤の使用量は、化合物(10)に対して0.001～5倍モルである。

反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

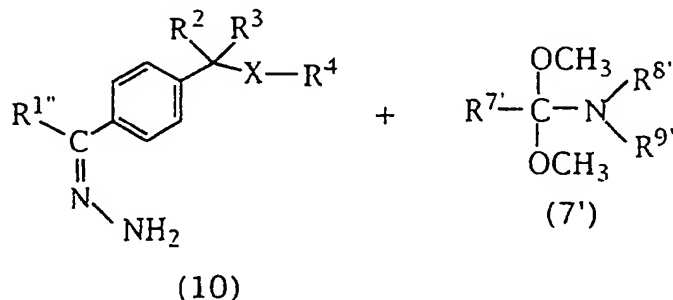
原料化合物の使用量は、化合物(10)に対して化合物(15)が0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

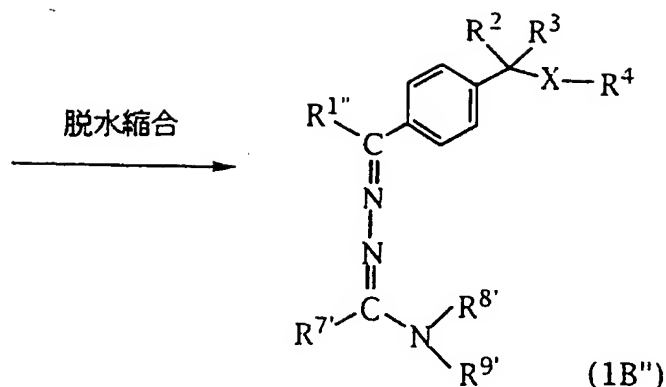
化合物(15)は、例えば、市販のN,N-ジメチルホルムアミドなどを使用することができる。

化合物(15)としては、後述の表5に示した化合物(1B'-1)～(1B'-48)に対応した置換基R⁷、R⁸及びR⁹からなる化合物(15)を挙げることができる(化合物(15)_(1B'-1)～(15)_(1B'-48)と称する。例えば、化合物(15)_(1B'-1)は、化合物(15)で示される式におけるR⁷、R⁸及びR⁹がCH₃である。)

製造法10:

次に示すように、化合物(10)と化合物(7')とを無溶媒もしくは溶媒中で反応させることによって、化合物(1B'') (化合物(1B)において、Yが-N=CR⁷NR⁸R⁹の場合)を製造する。





式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 $R^7 \sim R^9$ 及び X は、前記と同義である；

溶媒の種類としては、製造法5に記載したものと同一ものを使用することができる。

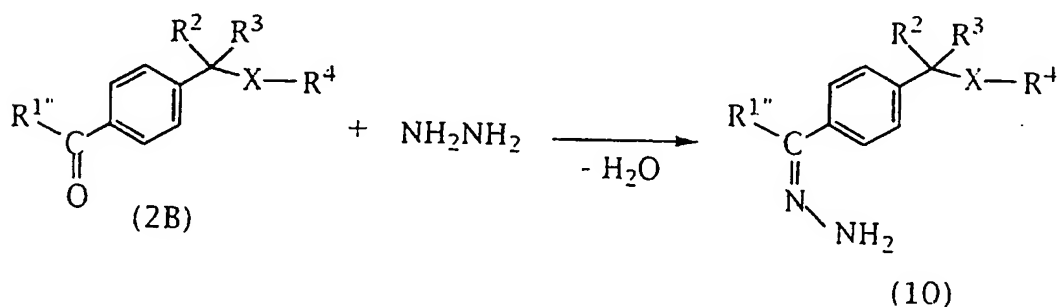
溶媒の使用量は、化合物(10)が1～80重量%であり、好ましくは1～50重量%である。

反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(10)に対して化合物(7')が0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

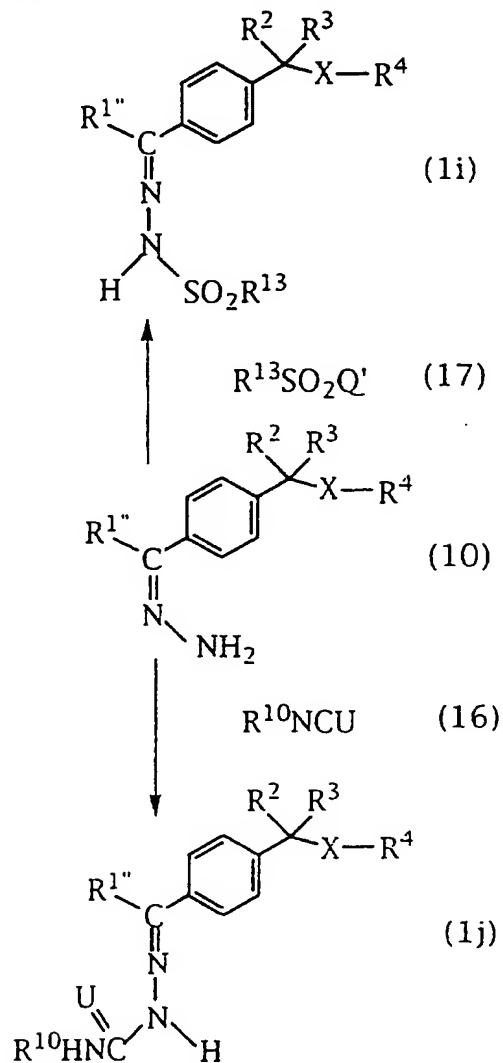
化合物(10)は、通常の水ドラゾンの合成と同様に、次に示すように化合物(2B)と水ドラジンとを反応させることによって製造することができる。



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 及び X は、前記と同義である；

製造法 1 1 及び 1 2 :

次に示すように、化合物(10)と化合物(16)又は(17)とを、塩基の存在下に溶媒中で反応させることによって、各々化合物(1i)又は(1j)を製造する。



式中、 $R^{1'}$, $R^{2'} \sim R^{4'}$, R^{10} , R^{13} , Q' , W 及び X は、前記と同義である；

溶媒の種類としては、製造法5に記載したものと同一ものを使用することがで
る。

溶媒の使用量は、化合物(10)が1~80重量%になるようにして使用することができ、1~50重量%が好ましい。

塩基の種類としては、製造法7に記載したものと同一ものを使用することができる。

塩基の使用量は、化合物(10)に対して0.001～5倍モルである。

反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(10)に対して化合物(16)又は(17)が0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

化合物(16)は、例えば、市販品のメチルイソシアナート、フェニルイソシアナート、フェニルイソチオシアナート、メチルイソチオシアナートなどを使用することができる。

化合物(17)は、例えば、市販のメタンスルホニルクロライド、トリフルオロメタンスルホニルクロライド、無水メタンスルホン酸、無水トリフルオロメタンスルホン酸、ベンゼンスルホン酸クロライドなどを使用することができる。

以上のようにして製造された目的の化合物(1)は、反応終了後、抽出、濃縮、濾過などの通常の後処理を行い、必要に応じて再結晶、各種クロマトグラフィーなどの公知の手段で適宜精製することができる。

化合物(2B)は、次の5種の合成法によって合成することができる。

(合成法1)

化合物(16)とハロゲン化アルキルとを、塩基の存在下で反応させることによって化合物(2b)(化合物(2B)において、XがSである化合物)を合成する。

溶媒の種類としては、製造法5に記載したものと同一ものを使用することができる。

ハロゲン化アルキルとしては、ヨウ化メチル、ヨウ化エチル、プロパルギルブロマイド、塩化メチレンなどを挙げることができる。

化合物(16)は、例えば、

・J. Org. Chem., 27, 93 (1962)

ベンジルハライドとチオウレアとを反応させてイソチウロニウム塩とした後に塩基で処理する方法

- ・ J. Org. Chem., 34, 4170 (1969)

ベンジルハライドとジチオ炭酸 *o*-エチルカリウムとを反応させてジチオ炭酸エステルとした後に酸性加水分解する方法

- ・ 特開昭62-294652号

ベンジルハライドと水硫化カリウムを相間移動触媒の存在下で反応させる方法などによって製造することができる。

化合物(16)としては、後述の表5に示した R^1 、 $R^2 \sim R^3$ を有するものを挙げることができる。

使用する化合物(16)とハロゲン化アルキルとの組み合わせは、化合物(2B)に示した置換基 R^1 、 $R^2 \sim R^4$ を有するものと対応させる。

塩基の種類としては、特に限定されず、例えば、トリエチルアミン、ピリジン、4-N,N-ジメチルアミノピリジン、N,N-ジメチルアニリン、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデカ-7-エンなどの有機塩基；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシドなどのアルカリ金属アルコキシド類；ナトリウムアミド、水素化ナトリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸水素ナトリウムなどの無機塩基；ブチルリチウム、リチウムジイソプロピルアミド、ビストリメチルシリルリチウムアミドなどを挙げるすることができる。

塩基の使用量は、化合物(16)に対して0.001～5倍モルである。

溶媒の使用量は、化合物(16)が1～80重量%であり、好ましくは1～50重量%である。

反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(16)に対してハロゲン化アルキルが0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

化合物(2b)としては、後述の表5に示した置換基 $R^{1'}$ 、 $R^2 \sim R^4$ を有するものを挙げることができる。

(合成法2)

化合物(17)とチオール類とを、塩基の存在下で反応させることによって化合物(2b)を合成する。

溶媒の種類としては、製造法5に記載したものと同一ものを使用することができる。

塩基の種類としては、合成法1に記載したものと同一ものを使用することができる。

塩基の使用量は、化合物(17)に対して0.001～5倍モルである。

チオール類としては、メチルメルカプタンナトリウム溶液、エチルメルカプタン、アリールメルカプタン、6-ブチルメルカプタン、プロピルメルカプタン、イソプロピルメルカプタン、シクロペンチルメルカプタン、ベンゼンチオール、ベンジルメルカプタン、フェネチルメルカプタンなどを挙げることができる。

化合物(17)は、例えば、Angew. Chem., 71, 349 (1959)、J. Org. Chem., 30, 38 (1965)、Org. Synth. V, 328 (1973)などに記載された、アルキルベンゼンをハロゲン化する方法などによって製造することができる。

化合物(17)としては、後述の表5に示した置換基 $R^{1'}$ 、 $R^2 \sim R^3$ を有するものを挙げることができる。

使用する化合物(17)とチオールとの組み合わせは、化合物(2B)に示した置換基 $R^{1'}$ 、 $R^2 \sim R^3$ を有するものと対応させる。

溶媒の使用量は、化合物(17)が1～80重量%であり、好ましくは1～50重量%である。

反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(13)に対してハロゲン化アルキルが0.5～

50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

(合成法3)

化合物(17)とアルコール類とを、塩基の存在下で反応させることによって化合物(2b') (化合物(2B)において、XがOである化合物)を合成する。

塩基の種類としては、合成法1に記載したものと同一ものを使用することができる。

塩基の使用量は、化合物(17)に対して0.001～5倍モルである。

アルコール類としては、エチルアルコール、メチルアルコール、イソプロピルアルコール、プロピルアルコール、n-ブチルアルコール、シクロプロピルアルコール、アリルアルコール、プロパルギルアルコール、ベンジルアルコール、トリフルオロエタノール、ヘキサフルオロイソプロパノール、トリクロロエタノール、ペンタフルオロプロパノールなどを挙げることができる。

使用する化合物(17)とアルコール類との組み合わせは、後述の表5に示した置換基 R^1 、 $R^2 \sim R^3$ を有するものと対応させる。

反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(17)に対してアルコール類が0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

(合成法4)

化合物(17)とアミン類とを、塩基の存在下で反応させることによって化合物(2b'') (化合物(2B)において、Xが NR^{22} である化合物)を合成する。

塩基の種類としては、合成法1に記載したものと同一ものを使用することができる。

塩基の使用量は、化合物(17)に対して0.001～5倍モルである。

アミン類としては、メチルアミン、ジメチルアミン、エチルアミン、ジエチルアミン、ベンジルアミン、アリルアミン、プロパルギルアミン、シクロペンチルアミン、アニリン、フェネチルアミン、イソプロピルアミン、n-ブチルアミン

などを挙げることができる。

反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(17)に対してアルコール類が0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

(合成法5)

化合物(2b)と酸化剤とを反応させることによって化合物(2b'') (化合物(2B)において、XがSO又はSO₂である化合物)を合成する。

溶媒の種類としては、製造法5に記載したものと同一ものを使用することができる。

酸化剤としては、過酸化水素、過酢酸、過安息香酸、m-クロル過安息香酸などの過酸類；メタ過ヨウ素酸ナトリウム；ヒドロペルオキシド；オゾン；二酸化セレン；クロム酸；四酸化二窒素；硝酸アシル；ヨウ素；N-ブロムコハク酸イミド；ヨードシルベンゼン；塩化スルフリル；含水シリカゲル；次亜塩素酸セブチル；オキシソル（アルドリッチ社製のパーオキシモノ硫酸カリウム）などを挙げることができる。

溶媒の使用量は、化合物(2b)が1～80重量%であり、好ましくは1～50重量%である。

反応温度は、特に限定されないが、通常室温～200℃の温度範囲内であり、好ましくは50～150℃である。

反応時間は、前記の濃度、温度によって変化するが、通常0.1～100時間であり、好ましくは0.3～24時間である。

原料化合物の使用量は、化合物(2b)に対して酸化剤が0.5～50倍モルであり、好ましくは0.8～10倍モルである。

化合物(2b'')としては、mが1又は2であって、後述の表4に対応した置換基R^{1'}、R²～R⁴であるものを挙げることができる。

(農園芸用の有害生物防除剤)

防除効果

本発明の化合物（１）で防除効果が認められる農園芸における有害生物としては、農園芸害虫（例えば、半翅目（ウンカ類、ヨコバイ類、アブラムシ類、コナジラミ類など）、鱗翅目（ハスモンヨトウなどのヨトウムシ類、コナガ、ハマキムシ類、メイガ類、シンクイムシ類、モンシロチョウなど）、鞘翅目（ゴミムシダマシ類、ゾウムシ類、ハムシ類、コガネムシ類など）、ダニ目（ハダニ科のミカンハダニ、ナミハダニなど、フシダニ科のミカンサビダニなど））、衛生害虫（例えば、ハエ、カ、ゴキブリなど）、貯穀害虫（ヒラタコクヌストモドキなどのコクヌストモドキ類、マメゾウムシ類など）、土壤中のコーンルートワーム、ネコブセンチュウ、マツノザイセンチュウ、ネダニなどを挙げることができる。また、農園芸病原菌（例えば、コムギ赤さび病、大麦うどんこ病、キュウリべと病、イネいもち病、トマト疫病など）を挙げることができる。

有害生物防除剤

本発明の農園芸用の有害生物防除剤は、特に、殺虫効果が顕著であり、化合物（１）の１種以上を有効成分として含有するものである。

化合物（１）は、単独で使用することもできるが、通常は常法によって、担体、界面活性剤、分散剤、補助剤などを配合（例えば、粉剤、乳剤、微粒剤、粒剤、水和剤、油性の懸濁液、エアゾールなどの組成物として調製する）して使用することが好ましい。

担体としては、例えば、タルク、ベントナイト、クレー、カオリン、ケイソウ土、ホワイトカーボン、バーミキュライト、消石灰、ケイ砂、硫安、尿素などの固体担体；炭化水素（ケロシン、鉱油など）、芳香族炭化水素（ベンゼン、トルエン、キシレンなど）、塩素化炭化水素（クロロホルム、四塩化炭素など）、エーテル類（ジオキサン、テトラヒドロフランなど）、ケトン類（アセトン、シクロヘキサノン、イソホロンなど）、エステル類（酢酸エチル、エチレングリコールアセテート、マレイン酸ジブチルなど）、アルコール類（メタノール、*n*-ヘキサノール、エチレングリコールなど）、極性溶媒（ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドなど）、水などの液体担体；空気、窒素、炭酸ガス、フレオンなどの気体担体（この場合には、混合噴射することができる）などを挙げるこ

とができる。

本剤の動植物への付着、吸収の向上、薬剤の分散、乳化、展着などの性能を向上させるために使用できる界面活性剤や分散剤としては、例えば、アルコール硫酸エステル類、アルキルスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、ポリオキシエチレングリコールエーテルなどを挙げることができる。そして、その製剤の性状を改善するためには、例えば、カルボキシメチルセルロース、ポリエチレングリコール、アラビアゴムなどを補助剤として用いることができる。

本剤の製造では、前記の担体、界面活性剤、分散剤及び補助剤をそれぞれの目的に応じて、各々単独で又は適当に組み合わせて使用することができる。

本発明の化合物(I)を製剤化した場合の有効成分濃度は、乳剤では通常1～50重量%、粉剤では通常0.3～25重量%、水和剤では通常1～90重量%、粒剤では通常0.5～5重量%、油剤では通常0.5～5重量%、エアゾールでは通常0.1～5重量%である。

これらの製剤を適当な濃度に希釈して、それぞれの目的に応じて、植物茎葉、土壌、水田の水面に散布するか、又は直接施用することによって各種の用途に供することができる。

実施例

以下、本発明を実施例によって具体的に説明する。なお、これらの実施例は、本発明の範囲を限定するものではない。

実施例1 (化合物(2A)の合成)

(1) 4-クロロ-4'-(4,6-ジメチル-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン(化合物(2A))の合成

4-クロロ-4'-ヒドロキシベンゾフェノン(3.3g)、2-クロロ-4,6-ジメチルピリミジン(2.0g)及び炭酸カリウム(3.0g)を、N,N-ジメチルホルムアミド(30ml)に懸濁し、70～80℃で10時間加熱攪拌した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加え、酢酸エチルで目的化合物を抽出し、2N水酸化ナトリウムで洗浄し、続いて、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥し

た後に溶媒を減圧下で留去した。

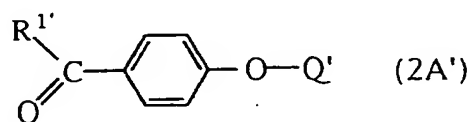
得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (Micro Sph
ere Gel D-150-60A, トルエン:酢酸エチル=6:1溶出) で
精製し、得られた結晶をヘキサンで洗浄することによって、淡黄色粉末である目
的化合物を3.4 g得た。

(2) 化合物(2A)の合成

前記(1)に記載の方法に準じて、後述の表2中のR^{1'}とQとの組み合わせから
なるその他の化合物(2A)を合成した。

以上のようにして合成した化合物(2A)の内の化合物(2A')とその物性値
を表1に例示する。

表1



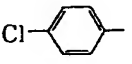
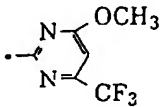
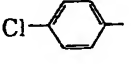
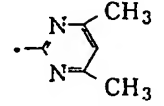

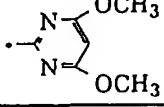
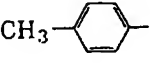
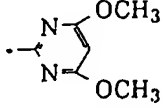
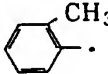
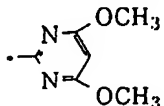
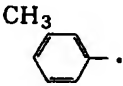
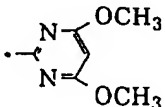

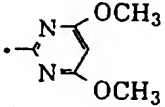
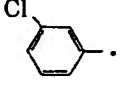
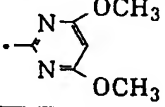

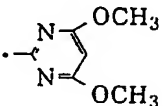
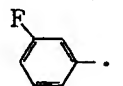
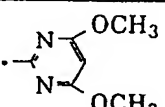
化合物	R ^{1'}	Q'	物 性
(2A) ₁			m.p. 107~109°C
(2A) ₆			m.p. 128~129°C
(2A) ₂₃			m.p. 66~69°C
(2A) ₂₆			m.p. 79~80°C
(2A) ₃₉			n _D ²⁰ 1.5963

表1 (続き)

化合物	R ¹	Q	物 性
(2A) ₁₀			n_D^{20} 1.5965
(2A) ₁₃			n_D^{20} 1.5989
(2A) ₁₄			m.p. 109~110°C
(2A) ₁₇			m.p. 99~100°C
(2A) ₅₁			ms (CI) m/z: 355 (MH ⁺)

実施例2 (化合物 (1A) の合成)

(1) 4-クロロ-4'-(5-クロロ-6-メチル-4-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (化合物1) の合成

製造法1によって、次のようにして合成した。

4-クロロ-4'-ヒドロキシベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (0.7 g)、4,5-ジクロロ-6-メチルピリミジン (0.4 g) 及び炭酸カリウム (0.5 g) を、N,N-ジメチルホルムアミド (20 ml) に懸濁し、70~80°Cで8時間加熱攪拌した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加え、酢酸エチルで目的化合物を抽出し、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=10:1 溶出) で精製し、ヘキサンで結晶化することによって、淡黄色結晶である目的化合物を0.4 g得た。

(2) 4-クロロ-4'-(5-トリフルオロメチル-2-ピリジルオキシ)ベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (化合物1A-2) の合成

製造法1によって、次のようにして合成した。

4-クロロ-4'-ヒドロキシベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (0.7 g)、2-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン (0.5 g) 及び炭酸カリウム (0.4 g) を、N, N-ジメチルホルムアミド (15 ml) に懸濁し、70~80℃で8時間加熱攪拌した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加え、酢酸エチルで目的化合物を抽出し、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=20:1 溶出) で精製することによって、黄色油状物である目的化合物を0.6 g得た。

(3) 4-クロロ-4'-(4,6-ジメトキシ-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (化合物1A-3) の合成

製造法1によって、次のようにして合成した。

4-クロロ-4'-ヒドロキシベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (0.7 g)、4,6-ジメトキシ-2-メタンスルホニルピリミジン (0.6 g) 及び炭酸カリウム (0.4 g) を、N, N-ジメチルホルムアミド (15 ml) に懸濁し、70~80℃で8時間加熱攪拌した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加え、酢酸エチルで目的化合物を抽出し、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=20:1 溶出) で精製することによって、黄色油状物である目的化合物を0.4 g得た。

(4) 4-クロロ-4'-(4-メトキシ-6-トリフルオロメチル-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (化合物1A-4) の合成

製造法1によって、次のようにして合成した。

4-クロロ-4'-ヒドロキシベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (0.54 g), 4-メトキシ-6-トリフルオロメチル-2-メタンスルホニルピリミジン (0.50 g) 及び炭酸カリウム (0.5 g) を、N, N-ジメチルホルムアミド (15 ml) に懸濁し、70~80℃で6時間加熱攪拌した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加え、酢酸エチルで目的化合物を抽出し、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン: 酢酸エチル=15:2 溶出) で精製することによって、黄色結晶の目的化合物を0.15 g得た。

(5) 4-クロロ-4'-(4, 6-ジメチル-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (化合物1A-7) の合成

製造法2によって、次のようにして合成した。

4-クロロ-4'-(4, 6-ジメチル-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン ヒドラゾン (0.8 g) 及びN, N-ジメチルアセトアミド ジメチルアセタール (0.6 g) の混合物を、6時間加熱還流した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加え、トルエンで目的化合物を抽出し、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン: 酢酸エチル=4:1 溶出) で精製することによって、黄色結晶である目的化合物を0.4 g得た。

(6) 4-クロロ-4'-(4, 6-ジメチル-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (化合物1A-8及び9) の合成

製造法3によって、次のようにして合成した。

4-クロロ-4'-(4, 6-ジメチル-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン (0.6 g), エチルカーバゼート ((0.6 g) 及び触媒量の三弗化硼

素-エーテル複合体をトルエン (100 ml) に溶解し、加熱脱水した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加え、トルエンで目的化合物 1A-8 及び 9 を抽出し、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (Micro Sphere Gel D-150-60 A、トルエン：酢酸エチル = (6 : 1) ~ (4 : 1) 溶出) で精製することによって、無色結晶である目的化合物 1A-8 及び 9 を各々 0.2 g ずつ得た。

(7) 4-クロロ-4'-(4-メチル-6-トリフルオロメチル-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン
(化合物 1A-46) の合成

製造法 1 によって、次のようにして合成した。

4-クロロ-4'-ヒドロキシベンゾフェノン 1-ジメチルアミノエチリデンヒドラゾン (0.8 g)、4-メチル-6-トリフルオロメチル-2-メタンスルホニルピリミジン (0.7 g) 及び炭酸カリウム (0.5 g) を、N,N-ジメチルホルムアミド (15 ml) に懸濁し、70~80℃で6時間加熱攪拌した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加え、酢酸エチルで目的化合物を抽出し、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲル C-200、トルエン：酢酸エチル = 20 : 1 溶出) で精製することによって、粘稠油状物の目的化合物を 0.8 g 得た。

(8) 4-クロロ-4'-(4-メトキシ-6-トリフルオロメチル-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン N'-アセチルヒドラゾン (化合物 1A-50 及び 51) の合成

製造法 4 によって、次のようにして合成した。

4-クロロ-4'-(4-メトキシ-6-トリフルオロメチル-2-ピリミジニルオキシ)ベンゾフェノン ヒドラゾン (0.45 g) 及びトリエチルアミン (0.13 g) をクロロホルム (20 ml) に溶解し、氷冷下、クロロホルム

(5 ml) に溶解した無水酢酸 (0.13 g) を加えて室温で2時間攪拌した。

反応終了後、水を加え、酢酸エチルで目的化合物を抽出し、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

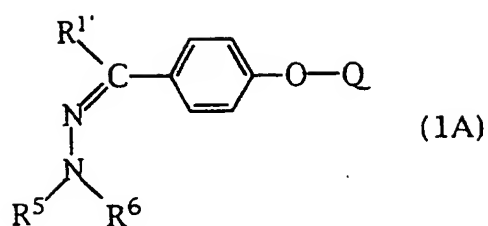
得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン: 酢酸エチル = 20 : 1 溶出) で精製することによって、白色粉末である目的化合物を各々0.06 g得た。

(9) 表2中のその他の化合物 (1A) の合成

前記(1)～(8)に記載の方法に準じて、表2中のその他の化合物 (1A) を合成した。

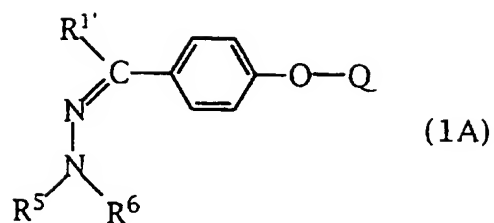
以上のようにした合成した化合物及びその物性を表2～3に示す。

表 2



化合物	R ^{1'}	R ⁵	R ⁶	Q	物 性
1A-1		=C (CH ₃) N (CH ₃) ₂			淡黄色固体 (表 3 参照)
1A-2		=C (CH ₃) N (CH ₃) ₂			黄色油状物 (表 3 参照)
1A-3		=C (CH ₃) N (CH ₃) ₂			黄色油状物 (表 3 参照)
1A-4		=C (CH ₃) N (CH ₃) ₂			m.p. 133~136°C
1A-5		=C (CH ₃) N (CH ₃) ₂			m.p. 134~135°C
1A-6		H	H		淡黄色粉末 (表 3 参照)
1A-7		=C (CH ₃) N (CH ₃) ₂			黄色粉末 (表 3 参照)
1A-8		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 147~149°C

表 2 (続き)



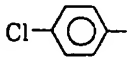
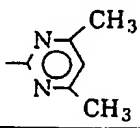
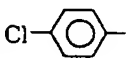
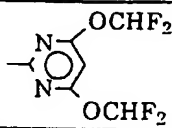
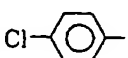
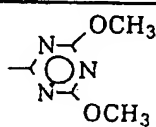
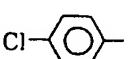
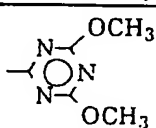
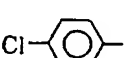
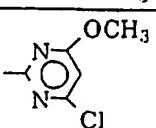
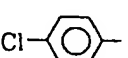
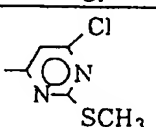
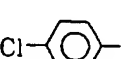
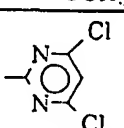
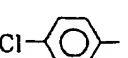
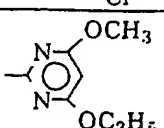
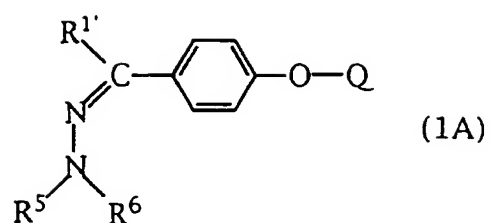
化合物	R ^{1'}	R ⁵	R ⁶	Q	物 性
1A-9		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1A-8 の 異性体 m.p. 135~139°C
1A-10		=C(CH ₃)N(CH ₃) ₂			m.p. 141~143°C
1A-11		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 204~206°C
1A-12		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1A-11 の 異性体 m.p. 160~161°C
1A-13		=C(CH ₃)N(CH ₃) ₂			m.p. 160~161°C
1A-14		=C(CH ₃)N(CH ₃) ₂			m.p. 122~123°C
1A-15		=C(CH ₃)N(CH ₃) ₂			m.p. 171~173°C
1A-16		=C(CH ₃)N(CH ₃) ₂			m.p. 125~126°C

表 2 (続き)



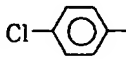
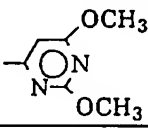
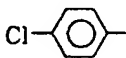
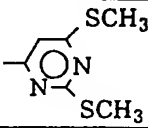
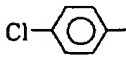
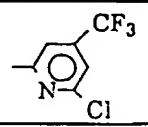
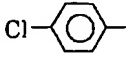
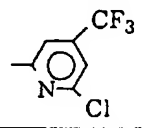
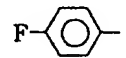
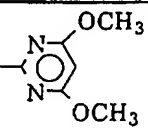
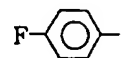
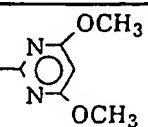

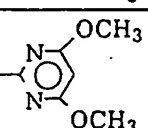

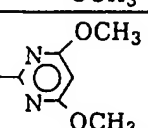
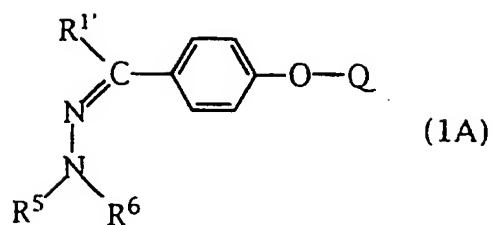
化合物	R ^{1'}	R ⁵	R ⁶	Q	物 性
1A-17		=C (CH ₃) N (CH ₃) ₂			m.p. 119~121°C
1A-18		=C (CH ₃) N (CH ₃) ₂			m.p. 139~143°C
1A-19		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 167~169°C
1A-20		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1 A - 1 9 の異性体 m.p. 133~135°C
1A-21		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 180~182°C
1A-22		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1 A - 2 1 の異性体 m.p. 134~135°C
1A-23		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 153~154°C
1A-24		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1 A - 2 3 の異性体 m.p. 152~153°C

表 2 (続き)



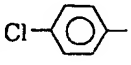
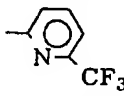
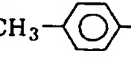
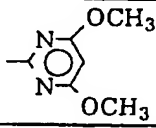
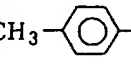
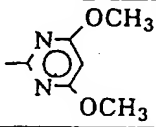
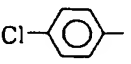
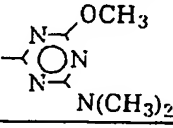
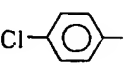
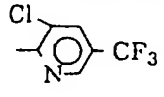
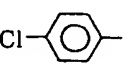
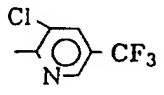
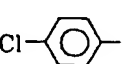
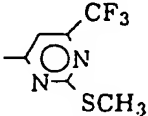
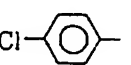
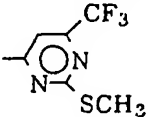
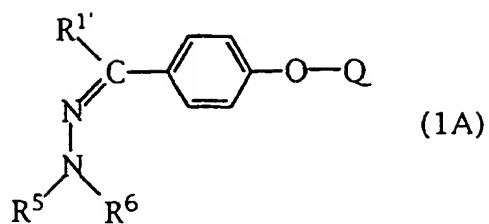
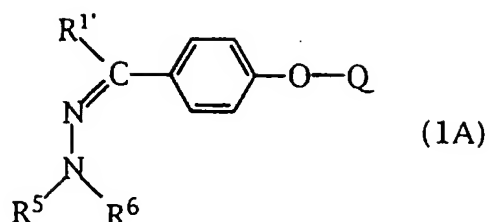
化合物	R ^{1'}	R ⁵	R ⁶	Q	物 性
1A-25		$=\text{C}(\text{CH}_3)\text{N}(\text{CH}_3)_2$			黄色油状物 (表 3 参照)
1A-26		H	$-\text{COOC}_2\text{H}_5$		m.p. 166~167°C
1A-27		H	$-\text{COOC}_2\text{H}_5$		化合物 1A-26 の異性体 m.p. 176~178°C
1A-28		$=\text{C}(\text{CH}_3)\text{N}(\text{CH}_3)_2$			黄色油状物 (表 3 参照)
1A-29		H	$-\text{COOC}_2\text{H}_5$		m.p. 123~127°C
1A-30		H	$-\text{COOC}_2\text{H}_5$		化合物 1A-29 の異性体 m.p. 180~182°C
1A-31		H	$-\text{COOC}_2\text{H}_5$		m.p. 157~160°C
1A-32		H	$-\text{COOC}_2\text{H}_5$		化合物 1A-31 の異性体 m.p. 192~194°C

表 2 (続き)



化合物	R ^{1'}	R ⁵	R ⁶	Q	物 性
1A-33		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 154~155℃
1A-34		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1 A - 3 3 の異性体 m.p. 182~184℃
1A-35		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 180~181℃
1A-36		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1 A - 3 5 の異性体 m.p. 127~129℃
1A-37		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 148~151℃
1A-38		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1 A - 3 7 の異性体 m.p. 183~185℃
1A-39		H	-COOC ₂ H ₅		粘稠油状物 (表 3 参照)
1A-40		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 146~148℃

表 2 (続き)



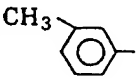
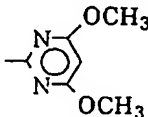
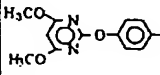
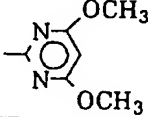

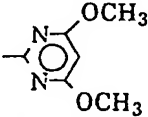
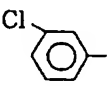
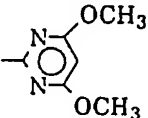
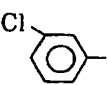
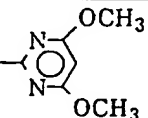
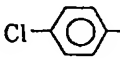
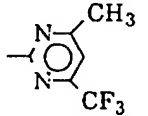

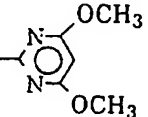

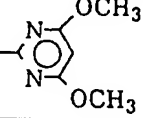
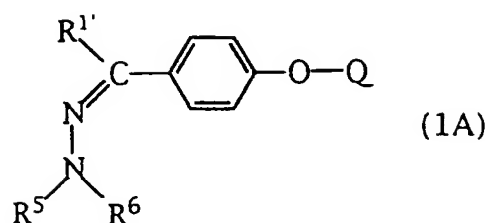
化合物	R ^{1'}	R ⁵	R ⁶	Q	物 性
1A-41		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1A-40 の 異性体 m.p. 106~109℃
1A-42		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 87~91℃
1A-43		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 143~144℃
1A-44		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 162~166℃
1A-45		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1A-44 の 異性体 m.p. 75~76℃
1A-46		=C(CH ₃)N(CH ₃) ₂			粘稠油状物 (表 3 参照)
1A-47		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 169~171℃
1A-48		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1A-47 の 異性体 m.p. (表 3 参照)

表 2 (続き)



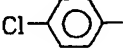
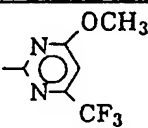
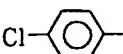
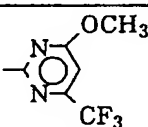
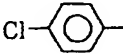
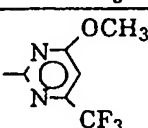
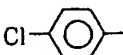
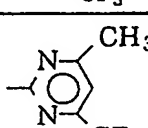
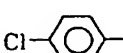
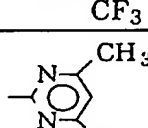

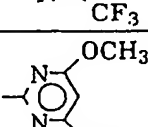

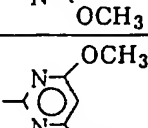
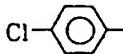
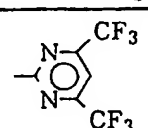
化合物	R ^{1'}	R ⁵	R ⁶	Q	物 性
1A-49		H	H		粘稠油状物 (表 3 参照)
1A-50		H	-COCH ₃		m.p. 129~132°C
1A-51		H	-COCH ₃		化合物 1A-50 の 異性体 m.p. 124~127°C
1A-52		H	-COCH ₃		m.p. 141~142°C
1A-53		H	-COCH ₃		m.p. 152~153°C
1A-54		H	-COOC ₂ H ₅		m.p. 182~183°C
1A-55		H	-COOC ₂ H ₅		化合物 1A-54 の 異性体 m.p. 121~122°C
1A-56		=C (CH ₃) N (CH ₃) ₂			m.p. 117~121°C

表 3

化合物	物 性: $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3), (δ ppm)
1 A - 1	2.40 (3H), 2.65 (3H), 2.92 (6H), 7.08-7.71 (8H), 8.46 (1H)
1 A - 2	2.35 (3H), 2.91 (6H), 7.10-7.90 (10H), 8.45 (1H)
1 A - 3	2.39 (3H), 2.92 (6H), 3.94 (6H), 5.78 (1H), 7.12-7.65 (8H)
1 A - 6	ms (CI) m/z: 353 (MH^+)
1 A - 7	2.40 (9H), 2.90 (6H), 6.78 (1H), 7.12-7.65 (8H)
1 A - 2 5	2.40 (3H), 2.93 (6H), 7.00-7.88 (11H)
1 A - 2 8	2.39 (3H), 2.93 (6H), 3.10-3.20 (6H), 3.92 (3H), 7.10-7.62 (8H)
1 A - 3 9	1.15-1.45 (3H), 2.13 (3H), 3.80 (6H), 4.15-4.40 (2H), 5.80 (1H), 7.05-7.70 (9H)
1 A - 4 6	2.40 (3H), 2.60 (3H), 2.96 (6H), 7.15-7.71 (9H)
1 A - 4 8	1.32 (3H), 3.86 (6H), 3.83-3.86 (2H), 5.82 (1H), 7.14-7.70 (8H), 8.16 (1H)
1 A - 4 9	ms (CI) m/z: 423 (MH^+)

実施例3 (化合物(2B)の合成)

(1) 4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン(化合物(2B-1))
の合成

4-クロロ-4'-プロモメチルベンゾフェノン(31g)をアセトニトリル(100ml)に溶解し、メチルメルカプタンナトリウム溶液(15%溶液)(50g)をゆっくりと加え、室温で3時間攪拌した。

反応終了後、反応液を水に注ぎ、トルエン(150ml)を加え、有機層を水で2回水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた固形物をイソプロピルエーテル(200ml)で再結することによって、白色結晶である目的化合物を20g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

2.00 (s, 3H)、3.72 (s, 2H)、

7.30~7.80 (m, 8H)

(2) 4-クロロ-4'-(メチルスルフォニルメチル)ベンゾフェノン(化合物(2B-3))の合成

4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン(2.6g)をメタノール(80ml)に溶解し、氷冷下で水(30ml)に溶解したOXONE(アルドリッチ社製)(6.1g)を滴下した後に30分間攪拌した。

反応終了後、反応液を水に注ぎ、析出した淡黄色固形物を濾別し、これを酢酸エチルに溶解して水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた固形物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=2:1溶出)で精製することによって、白色結晶である目的化合物を2.6g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

2.86 (s, 3H)、4.35 (s, 2H)、

7.46~7.83 (m, 8H)

・ CI-MS m/z 309 ($m+1$)

(3) 4-フルオロ-4'-(メチルスルフィニルメチル)ベンゾフェノン(化合物(2B-8))の合成

4-フルオロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン(2.6 g)をメタノール(60 ml)に溶解し、-30℃以下で水(20 ml)に溶解したOXONE(アルドリッチ社製)(3.8 g)を滴下した後に10分間攪拌した。

反応終了後、反応液を水に注ぎ、析出した淡黄色固形物を濾別し、これを酢酸エチルに溶解して水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル:メタノール=10:5:1溶出)で精製することによって、白色結晶である目的化合物を2.4 g得た。

・CI-MS m/z 277 (m+1)

(4) 4-メトキシ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン
(化合物(2B-16))の合成

4-フルオロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン(4.4 g)をメタノール(50 ml)に懸濁し、ナトリウムメチラート28%メタノール溶液(6.0 g)を加え、12時間加熱還流した。

反応終了後、メタノールを減圧下で留去し、酢酸エチル(50 ml)を加え、有機層を水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=6:1溶出)で精製することによって、無色粘稠液体である目的化合物を2.6 g得た。

・¹H-NMR (CDCl₃, -TMS), (δ ppm)

2.02 (s, 3H)、3.74 (s, 2H)、3.87 (s, 3H)、
6.95~7.85 (m, 8H)

(5) 4-クロロ-4'-(ジフルオロメチルチオメチル)ベンゾフェノン
(化合物(2B-33))の合成

4-クロロ-4'-(メルカプトメチル)ベンゾフェノン(0.5 g)及び炭

酸カリウム (0.3 g) を DMF (30 ml) に加え、45℃ でクロルジフルオロメタンを0.5時間攪拌しながら吹き込んだ。

反応液を水に注ぎ、トルエン (50 ml) を加え、有機層を2回水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=8:1溶出) で精製することによって、白色固体である目的化合物を0.5 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , -TMS), (δ ppm)

4.06 (s, 2H)、6.58~7.02 (t, 1H)、

7.40~7.85 (m, 8H)

・ CI-MS m/z 313 ($m+1$)

(6) 4-クロロ-4'-(トリフルオロメチルチオメチル)ベンゾフェノン (化合物(2B-34))の合成

4-クロロ-4'-ブロモメチルベンゾフェノン (1.8 g) をアセトニトリル 100 ml に溶解し、銅トリフルオロメタンチオール (東京化成製品) (1 g) を懸濁させる。70時間加熱還流した後、反応液を水に注ぎトルエン 50 ml を加え、有機層を2回水洗する。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧下で留去した。得られた固形物をカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=6:1溶出) で精製することによって、白色固体の目的化合物を0.7 g得た。

・ 融点 75~76℃

(7) 4-クロロ-4'-(2,2,2-トリフルオロエチルチオメチル)ベンゾフェノン (化合物(2B-35))の合成

トルエン 30 ml に4-クロロ-4'-(メルカプトメチル)ベンゾフェノン (1.0 g)、1-ヨード-2,2,2-トリフルオロエタン (0.8 g) を溶解し、1,8-ジアザビシクロ [5.4.0]ウンデカ-7-エン (0.7 g) を室温で滴下した。室温で1時間攪拌した後、反応液を水に注ぎトルエン 50 ml を加え、有機層を2回水洗する。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧下で留去した。得られた油状物をカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200

0, ヘキサン:酢酸エチル=8:1溶出)で精製することによって、白色固体の目的化合物を0.7 g得た。

・融点60~62℃

(8) 4-クロロ-4'-(2, 2, 2-トリフルオロエトキシメチル)ベンゾフェノン (化合物(2B-51))の合成

4-クロロ-4'-ブロモメチルベンゾフェノン (5.0 g)、2, 2, 2-トリフルオロエタノール (5.0 g) 及び炭酸カリウム (3.5 g) をDMF (60 ml) に加えて100℃で5時間攪拌した後、反応液を水に注ぎ、トルエン (150 ml) を加え、有機層を2回水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後溶媒を減圧下で留去した。

得られた固形物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=6:1溶出) で精製することによって、白色結晶である目的化合物を4.4 g得た。

(9) 4-クロロ-4'-(メチルアミノメチル)ベンゾフェノン
(化合物(2B-59))の合成

4-クロロ-4'-ブロモメチルベンゾフェノン (5.0 g)、40%メチルアミンメタノール溶液 (6.0 g) 及び炭酸カリウム (3.5 g) をDMF (60 ml) に加えて60℃で10時間攪拌した後、反応液を水に注ぎ、酢酸エチル (150 ml) を加え、有機層を2回水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後溶媒を減圧下で留去した。

得られた固形物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=4:1溶出) で精製することによって、白色結晶である目的化合物を3.6 g得た。

(10) 4-クロロ-4'-(プロパルギルチオメチル)ベンゾフェノン
(化合物(2B-68))の合成

4-クロロ-4'-(メルカプトメチル)ベンゾフェノン (0.5 g) 及び炭酸カリウム (0.3 g) をDMF (30 ml) に加え、プロパルギルブロミド (0.3 g) を室温で滴下した。

40~50℃で1時間攪拌した後、反応液を水に注ぎ、トルエン (50 ml)

を加え、有機層を2回水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ワコーゲルC-200、ヘキサン：酢酸エチル＝8：1溶出）で精製することによって、無色粘稠液体である目的化合物を0.5 g得た。

・ CI-MS m/z 301 ($m+1$)

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , δ ppm)

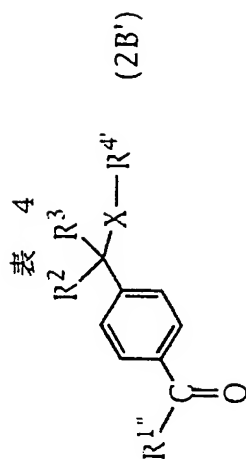
2.3 (s, 1H)、3.1 (s, 2H)、3.95 (s, 2H)、

7.35～7.85 (m, 8H)

(11) 表4中の $\text{R}^{1'}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^4$ 及びXを有する化合物(2B)の合成

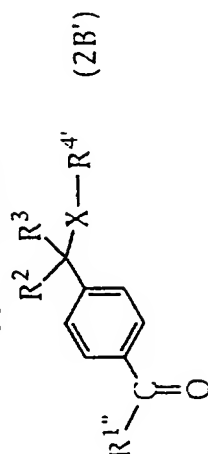
前記(1)～(10)に記載の方法に準じて、表4中の $\text{R}^{1'}$ 、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^4$ 及びXを有する化合物(2B)を合成した。

以上のようにして合成した化合物(2B)の中で、新規である化合物(2B')及びその物性を表4及び後述の表6に示す。

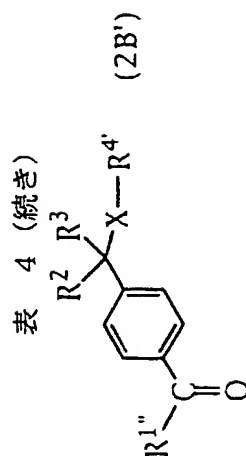


化合物	R ^{1''}	R ²	R ³	R ^{4'}	X	物 性
2B-1	4-ClPh	H	H	CH ₃	S	融点 71~73°C
2B-2	4-ClPh	H	H	CH ₃	SO	融点 114~117°C
2B-3	4-ClPh	H	H	CH ₃	SO ₂	融点 109~112°C
2B-4	Ph	H	H	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6214
2B-5	Ph	H	H	CH ₃	SO	融点 101~103°C
2B-6	Ph	H	H	CH ₃	SO ₂	融点 137~140°C
2B-7	4-FPh	H	H	CH ₃	S	融点 46~47°C
2B-8	4-FPh	H	H	CH ₃	SO	融点 108~110°C
2B-9	4-FPh	H	H	CH ₃	SO ₂	
2B-10	4-BrPh	H	H	CH ₃	S	融点 76~77°C
2B-11	4-IPh	H	H	CH ₃	S	融点 75~78°C
2B-12	4-CF ₃ Ph	H	H	CH ₃	S	融点 63~65°C
2B-13	4-NO ₂ Ph	H	H	CH ₃	S	
2B-14	4-CNPh	H	H	CH ₃	S	
2B-15	4-CH ₃ Ph	H	H	CH ₃	S	
2B-16	4-OCH ₃ Ph	H	H	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6315

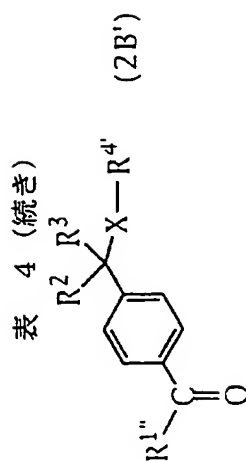
表 4 (続き)



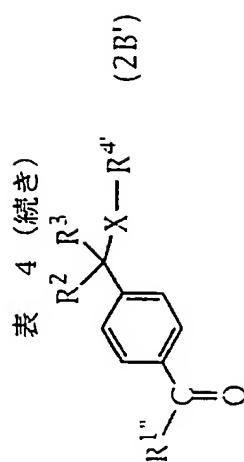
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ^{4'}	X	物 性
2B-17	2, 4-Cl ₂ Ph	H	H	CH ₃	S	融点 75~76°C
2B-18	2, 4-Cl ₂ Ph	H	H	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6185
2B-19	3, 4-Cl ₂ Ph	H	H	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6322
2B-20	3, 4-Cl ₂ Ph	H	H	C ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.6111
2B-21	3, 4-Cl ₂ Ph	H	H	n-C ₃ H ₇	S	融点 46~49°C
2B-22	4-ClPh	H	H	i-C ₃ H ₇	S	融点 47~48°C
2B-23	4-ClPh	H	H	n-C ₄ H ₉	S	n _D ²⁰ 1.6096
2B-24	4-ClPh	H	H	t-C ₄ H ₉	S	
2B-25	4-ClPh	H	H	CH ₂ CH=CH ₂	S	n _D ²⁰ 1.6320
2B-26	4-ClPh	H	H	cycl-C ₅ H ₉	S	融点 64~66°C
2B-27	4-ClPh	H	H	cycl-C ₆ H ₁₁	S	融点 81~83°C
2B-28	4-ClPh	H	H	Ph	S	
2B-29	4-ClPh	H	H	4-ClPh	S	
2B-30	4-ClPh	H	H	4-CH ₃ Ph	S	
2B-31	4-ClPh	H	H	CH ₃ Ph	S	n _D ²⁰ 1.6491
2B-32	4-ClPh	H	H	CH ₂ CH ₂ Ph	S	



化合物	R ^{1''}	R ²	R ³	R ^{4'}	X	物 性
2B-33	4-ClPh	H	H	CHF ₂	S	融点 61~63°C
2B-34	4-ClPh	H	H	CF ₃	S	融点 75~76°C
2B-35	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	S	融点 60~62°C
2B-36	4-ClPh	H	H	CH ₂ CCl ₃	S	
2B-37	4-ClPh	H	H	CH ₂ C ₂ F ₅	S	
2B-38	4-ClPh	H	H	CH(CF ₃) ₂	S	
2B-39	4-ClPh	H	H	CBrF ₂	S	
2B-40	4-ClPh	H	H	CHFCHF ₂	S	
2B-41	4-ClPh	H	H	CF ₂ CFC1H	S	
2B-42	4-ClPh	H	H	CF ₂ CHFCF ₃	S	
2B-43	4-ClPh	H	H	CH=CH-CF=CF ₂	S	
2B-44	4-ClPh	H	H	CH ₂ CH ₂ CF ₃	S	
2B-45	4-ClPh	CN	CH ₃	4-ClPh	S	
2B-46	i-C ₄ H ₉	H	H	C ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5437
2B-47	i-C ₃ H ₇	H	H	CH ₃ Ph	S	
2B-48	CH ₃	H	H	CH ₂ CH ₂ Ph	S	



化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ^{4'}	X	物 性
2B-49	C ₂ H ₅	H	H	CH ₃	S	
2B-50	4-ClPh	H	H	CH ₃	O	
2B-51	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	O	融点 61~64°C
2B-52	4-ClPh	H	H	CH ₂ CCl ₃	O	
2B-53	4-ClPh	H	H	CH ₂ C ₂ F ₅	O	
2B-54	4-ClPh	H	H	CH ₃	NCOCH ₃	
2B-55	4-ClPh	H	H	CH ₃	NCHO	
2B-56	4-ClPh	H	H	SO ₂ CH ₃	NH	
2B-57	4-ClPh	H	H	SO ₂ CH ₃	O	
2B-58	4-ClPh	H	H	CN	S	
2B-59	4-ClPh	H	H	CH ₃	NH	融点 79~81°C
2B-60	4-ClPh	H	H	CH ₃	NCH ₃	
2B-61	4-ClPh	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	
2B-62	4-ClPh	CH ₃	H	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6258
2B-63	4-ClPh	CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅	S	
2B-64	4-ClPh	CH ₃	H	C ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.6167



化合物	R ^{1''}	R ²	R ³	R ^{4'}	X	物 性
2B-65	CF ₃	H	H	CH ₃	S	
2B-66	4-ClPh	H	H	CH ₂ Cl	S	融点 101~103°C
2B-67	4-ClPh	H	H	CSOC ₂ H ₅	S	表 6 参照
2B-68	4-ClPh	H	H	CH ₂ C≡CH	S	n _D ²⁰ 1.6320
2B-69	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO	融点 101~103°C
2B-70	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂	融点 112~113°C
2B-71	4-ClPh	H	H	CF ₃	SO	
2B-72	4-ClPh	H	H	CF ₃	SO ₂	融点 105~107°C
2B-73	4-ClPh	H	H	CF=CFCF ₃	S	
2B-74	4-ClPh	H	H	CF=CHF	S	
2B-75	4-CF ₃ OPh	H	H	C ₂ H ₅	S	融点 32~34°C
2B-76	4-CF ₃ CH ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	S	
2B-77	4-CH ₃ SO ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	S	
2B-78	4-CF ₃ SO ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	S	
2B-79	4-CF ₃ SO ₂ OPh	H	H	CH ₃	S	

実施例4 (化合物(1B)の合成)

- (1) 4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-1))の合成

4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン (2.7 g)、カルバジン酸エチル (1.2 g) をトルエン (50 ml) に溶解し、これにボロントリフルオライド エチルエーテル コンプレックス (0.2 ml) を加え、3時間加熱還流した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加えてトルエン層を洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=5:1 溶出) で精製することによって、白色結晶である目的化合物を2.4 g得た。

- (2) 4-クロロ-4'-(メチルスルフィニルメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-4))の合成

4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (1.0 g) をメタノール (30 ml) に溶解し、-30℃以下で水 (10 ml) に溶解したOXONE (アルドリッチ社製) (1.9 g) を滴下した後に10分間攪拌した。

反応終了後、反応液を水に注ぎ、析出した淡黄色固形物を濾別し、これを酢酸エチルに溶解して水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル:メタノール=10:5:1 溶出) で精製することによって、白色結晶である目的化合物を0.8 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)

1.20~1.40 (m, 3H)、2.46~2.63 (3H)、
3.90~4.06 (m, 2H)、4.12~4.40 (m, 2H)、
7.15~7.60 (m, 8H)、7.70~7.90 (m, 1H)

- (3) 4-クロロ-4'-(メチルスルフォニルメチル)ベンゾフェノン N'-

エトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-5))の合成

4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (1.0 g) をメタノール (30 ml) に溶解し、氷冷下で水 (10 ml) に溶解したOXONE (アルドリッチ社製) (3.8 g) を滴下した後に30分間攪拌した。

反応終了後、反応液を水に注ぎ、析出した淡黄色固形物を濾別し、これを酢酸エチルに溶解して水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=2:1 溶出) で精製することによって、白色結晶である目的化合物を0.9 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

1.25~1.40 (m, 3H)、2.45~2.95 (m, 3H)、
4.20~4.40 (m, 4H)、7.15~7.60 (m, 8H)、
7.74~7.88 (m, 1H)

(4) 4-フルオロ-4'-(メチルスルフィニルメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-10))の合成

4-フルオロ-4'-(メチルスルフィニルメチル)ベンゾフェノン (1.0 g) 及びカルバジン酸エチル (0.5 g) をトルエン (50 ml) に懸濁し、これにボロン トリフルオライド エチルエーテル コンプレックス (0.1 ml) を加え、3時間加熱還流した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加えてトルエン層を洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル:メタノール=10:5:1 溶出) で精製することによって、白色結晶である目的化合物を0.9 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

1.20~1.40 (m, 3H)、2.45~2.65 (m, 3H)、
3.90~4.12 (m, 2H)、4.15~4.35 (m, 2H)、

6. 96~7. 65 (m, 8H)、7. 85~7. 90 (m, 1H)

(5) 4-フルオロ-4'-(メチルスルフォニルメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-11))の合成

4-フルオロ-4'-(メチルスルフォニルメチル)ベンゾフェノン (1. 0 g) 及びカルバジン酸エチル (0. 5 g) をトルエン (50 ml) に懸濁し、これにボロン トリフルオライド エチルエーテル コンプレックス (0. 1 ml) を加え、3時間加熱還流した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加えてトルエン層を洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン: 酢酸エチル=2: 1 溶出) で精製することによって、白色結晶である目的化合物を0. 8 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl₃-TMS), (δ ppm)

1. 20~1. 42 (m, 3H)、2. 75~3. 00 (m, 3H)、
4. 10~4. 40 (m, 4H)、6. 95~7. 70 (m, 8H)、
7. 70~7. 90 (m, 1H)

(6) 4-クロロ-4'-(エチルスルホニルメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-40)及び化合物(1B'-41))の合成

4-クロロ-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (1. 0 g) をメタノール (120 ml) に溶解し、氷冷下で水 (25 ml) に溶解したOXONE (アルドリッチ社製) (1. 79 g) を滴下して10分間攪拌した後に室温まで温度を上昇させ、反応液を水に注ぎ、析出した淡黄色固形物を濾取し、酢酸エチルに溶解して水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン: 酢酸エチル=3: 1 溶出) で精製することによって、白色結晶の化合物(1a-40)を0. 22 gと白色結晶の化合物(1a-41)を0. 44 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl₃-TMS), (δ ppm)

化合物(1B'-40)

1. 36 (t, 3H)、1. 39 (t, 3H)、2. 85 (q, 2H)、
4. 15~4. 35 (m, 4H)、7. 15~7. 80 (m, 9H)

化合物(1B'-41)

1. 32 (t, 3H)、1. 47 (t, 3H)、3. 03 (q, 2H)、
4. 10~4. 40 (m, 4H)、7. 10~7. 85 (m, 9H)

(7) 4-クロロ-4'-(フェニルチオメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン(化合物(1B'-68))の合成

4-クロロ-4'-(フェニルチオメチル)ベンゾフェノン(2. 7g)及びカルバジン酸エチル(1. 2g)をトルエン(50ml)に溶解し、これにボロン トリフルオライド エチルエーテル コンプレックス(0. 2ml)を加え、3時間加熱還流した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加えてトルエン層を洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=5:1溶出)で精製することによって、油状物である目的化合物を2. 4g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

1. 20~1. 40 (m, 3H)、4. 08~4. 18 (2H)、
4. 20~4. 36 (m, 2H)、7. 10~7. 60 (m, 13H)、
7. 65~7. 85 (m, 1H)

(8) 4-クロロ-4'-(2, 2, 2-トリフルオロエトキシメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン(化合物(1B'-123))の合成

4-クロロ-4'-(2, 2, 2-トリフルオロエトキシメチル)ベンゾフェノン(0. 5g)及びカルバジン酸エチル(0. 3g)をトルエン(30ml)に溶解し、これにボロン トリフルオライド エチルエーテル コンプレックス(0. 1ml)を加え、3時間加熱還流した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加えてトルエン層を洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ワコーゲルC-20

0, トルエン：酢酸エチル=9：1 溶出) で精製することによって、無色粘稠液体である目的化合物を0.4 g 得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)

1. 20~1.40 (br, 3H)、3.70~4.10 (m, 2H)、

4.20~4.40 (br, 2H)、4.65~4.75 (d, 2H)、

7.10~7.60 (m, 8H)、7.70~7.90 (m, 1H)

(9) 4-クロロ-4'-(メチルアミノメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-127))の合成

4-クロロ-4'-(メチルアミノメチル)ベンゾフェノン (0.5 g) 及びカルバジン酸エチル (0.3 g) をトルエン (30 ml) に溶解し、これにボロン トリフルオライド エチルエーテル コンプレックス (0.1 ml) を加え、5時間加熱還流した。

反応終了後、室温まで冷却し、水を加えてトルエン層を洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン：酢酸エチル=4：1 溶出) で精製することによって、白色固体である目的化合物を0.3 g 得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)

1.20~1.40 (br, 3H)、1.40~1.80 (br, 1H)、

2.30~2.60 (d, 3H)、3.60~3.90 (d, 2H)、

4.10~4.40 (br, 2H)、7.10~7.60 (m, 8H)、

7.70~7.90 (m, 1H)

(10) 4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン ヒドラゾン (化合物(1B'-134))の合成

4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン (2.7 g) 及びヒドラゾン-水和物 (1.5 g) をエタノール (30 ml) に溶解し、濃硫酸 (0.1 ml) を加え、6時間加熱還流した。

反応終了後、この反応混合物からエタノールを減圧下で留去し、酢酸エチル (50 ml) を加えて水で2回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトル

エンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ワコーゲルC-200, ヘキサン：酢酸エチル=5：1溶出）で精製することによって、淡黄色結晶である目的化合物を2.3 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , -TMS), (δ ppm)

1.98~2.10 (3H), 3.62~3.75 (2H),

5.36~5.50 (m, 2H), 7.15~7.55 (m, 8H)

(11) 4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-アセチルヒドラゾン (化合物(1B'-135) 及び化合物(1B'-136))の合成

化合物(1B'-134) (2.2 g) 及びトリエチルアミン (1.2 g) をクロロホルム (50 ml) に溶解し、氷冷下で無水酢酸 (1.0 g) を滴下した後、室温で一晩攪拌した。

反応終了後、反応液を水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にクロロホルムを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ワコーゲルC-200, ヘキサン：酢酸エチル=3：1溶出）で精製することによって、白色結晶の化合物(1B'-135) を1.3 gと白色結晶の化合物(1B'-136) を0.7 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , -TMS), (δ ppm)

化合物(1B'-135)

2.10 (s, 3H), 2.45 (s, 3H), 3.76 (s, 2H),

7.15~7.60 (m, 8H), 8.46 (s, 1H)

化合物(1B'-136)

2.00 (s, 3H), 2.40 (s, 3H), 3.68 (s, 2H),

7.15~7.60 (m, 8H), 8.12 (s, 1H)

(12) 4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N', N'-ジアセチルヒドラゾン (化合物(1B'-140))の合成

4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン ヒドラゾン (1.2 g) をDMF (30 ml) に溶解し、水素化ナトリウム (60%) (0.32 g) を加え、室温でアセチルクロライド (0.8 g) を滴下した後、室温で2時

間攪拌した。

反応液を水に注ぎ、酢酸エチル (80 ml) を加えて抽出し、有機層を食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲル C-200, トルエン: 酢酸エチル = 5 : 1 溶出) で精製することによって、淡黄色油状物である目的化合物を 0.6 g 得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

2.03 (s, 3H), 2.11 (s, 3H), 2.24 (s, 3H),

3.67 (s, 2H), 7.10~7.60 (m, 8H)

(13) 4-クロロ-4' - (メチルチオメチル) ベンゾフェノン N' - (N-4-トリフルオロメチルフェニルカルバモイル) ヒドラゾン

(化合物(1B'-146) 及び(1B'-147))の合成

4-クロロ-4' - (メチルチオメチル) ベンゾフェノン ヒドラゾン (0.8 g) をトルエン (40 ml) に溶解し、室温攪拌下、4-トリフルオロメチルフェニルイソシアナート (0.52 g) 及びトリエチルアミン (0.05 ml) を加え、4.5時間攪拌した。

反応終了後、この反応混合物にトルエンを加えて抽出し、有機層を食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲル C-200, トルエン: 酢酸エチル = 25 : 1 溶出) で精製することによって、白色粉末の化合物(1B'-146) を 0.28 g、白色粉末の化合物(1B'-147) を 0.24 g 得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

化合物(1B'-146)

2.03 (s, 3H), 3.60 (s, 2H),

7.15~7.70 (m, 13H), 8.48 (s, 1H)

化合物(1B'-147)

2.10 (s, 3H), 3.75 (s, 2H),

7.20~7.75 (m, 13H), 8.43 (s, 1H)

(14) 4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-メチルヒ
ドラゾン (化合物(1B'-173)の合成

4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン (2.9 g)、メチ
ルヒドラゾン (5 ml) 及び酢酸 (0.5 ml) をエタノール (100 ml) に
溶解して6時間攪拌した。

反応終了後、この反応混合物からエタノールを減圧下で留去し、酢酸エチルを
加えて抽出した。次いで、この有機層を食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで
乾燥した後に酢酸エチルを減圧下で留去し、乾燥し、褐色油状物である目的化合
物を3.0 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

1.96~2.08 (3H)、3.00 (3H)、
3.62~3.72 (2H)、5.03~5.26 (1H)、
7.10~7.50 (8H)

(15) 4-クロロ-4'-(メルカプトメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシ
カルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-178))の合成

4-クロロ-4'-(クロルメチルチオメチル)ベンゾフェノン (0.3 g)
及びカルバジン酸エチル (0.2 g) をトルエン (20 ml) に溶解し、ボロン
トリフルオライド エチルエーテル コンプレックス (0.1 ml) を加え、
3時間加熱還流した。

反応終了後、室温まで冷却し、トルエン層を水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾
燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-20
0、トルエン：酢酸エチル=9：1溶出) で精製することによって、無色アメ状
物である目的化合物を0.2 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

1.20~1.40 (m, 3H)、1.70~1.95 (m, 1H)、
3.70~3.90 (m, 2H)、4.20~4.40 (m, 2H)、
7.10~7.60 (m, 8H)、7.70~7.90 (m, 1H)

(16) 4-ブロモ-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシ

カルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-190))の合成

4-ブロモ-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン (1.72 g) 及びカルバジン酸エチル (1.6 g) をトルエン (50 ml) に溶解し、ボロントリフルオライド エチルエーテル コンプレックス (0.2 ml) を加え、3時間加熱還流した。

反応終了後、室温まで冷却し、トルエン層を水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=9:1 溶出) で精製することによって、黄色油状物である目的化合物を0.55 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

- 1.21 (t, 3H)、1.30 (t, 3H)、
- 2.35~2.58 (m, 2H)、3.70~3.80 (s, 2H)、
- 4.15~4.35 (m, 2H)、7.13~7.60 (m, 8H)
- 7.68~7.85 (br, 1H)

(17) 4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-メチル-N'-アセチルヒドラゾン (化合物(1B'-199))の合成

4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-メチルヒドラゾン (1.0 g) をクロロホルム (30 ml) に溶解し、トリエチルアミン (0.4 g) を加え、室温で無水酢酸 (0.4 g) を滴下し、室温で6時間攪拌した。

反応液にトルエンを加えて抽出し、有機層を食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=10:1 溶出) で精製することによって、黄色油状物である目的化合物を0.8 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

- 2.00~2.05 (m, 3H)、2.35 (s, 3H)、
- 2.71~2.76 (m, 3H)、3.70~3.75 (m, 2H)

7. 10~7. 60 (m, 8H)

(18) 4-クロロ-4'-エチルチオメチルベンゾフェノン N'-ホルミルヒドラゾン (化合物(1B'-208))の合成

4-クロロ-4'-エチルチオメチルベンゾフェノン ヒドラゾン (3. 0 g), 88%ギ酸 (30ml) の混合物を5時間加熱還流した。

反応終了後、反応液を室温まで冷却し、水に注ぎ、酢酸エチル50mlを加え、有機層を2回水洗する。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン: 酢酸エチル=15:1 溶出) で精製することによって、黄色油状物を0. 5 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , -TMS), (δ ppm)

1. 20~1. 34 (m, 3H)、2. 37~2. 59 (m, 2H)、

3. 70~3. 80 (m, 2H)、7. 10~7. 60 (m, 8H)、

8. 35~8. 52 (m, 1H)、8. 81~8. 88 (m, 1H)

(19) 4-クロロ-4'-エチルチオメチルベンゾフェノン N'-クロロアセチルヒドラゾン (化合物(1B'-212))の合成

4-クロロ-4'-エチルチオメチルベンゾフェノン ヒドラゾン (6. 0 g), トリエチルアミン (4ml) をトルエン (60ml) に溶解し、クロロアセチルクロライド (3 g) のトルエン (10ml) 溶液を室温攪拌下徐々に滴下し、そのまま8時間攪拌した。

反応終了後、水に注ぎ、酢酸エチル (100ml) を加え、有機層を2回水洗した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン: 酢酸エチル=10:1 溶出) で精製することによって、白色粉末を3. 6 g得た。

・ 融点80~85℃

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , -TMS), (δ ppm)

1. 20~1. 38 (m, 3H)、2. 40~2. 60 (m, 2H)、

3.70~4.70 (m, 4H)、7.20~7.62 (m, 8H)、

8.40~9.42 (m, 1H)

(20) N-((4-クロロ-4'-エチルチオメチルジフェニルメチリデン)アミノ)コハク酸イミド (化合物(1B'-213))の合成

4-クロロ-4'-エチルチオメチルベンゾフェノン ヒドラゾン (1.0 g)、トリエチルアミン (1.5 ml)、触媒量のN,N-ジメチルアミノピリジンをトルエン (20 ml) に溶解し、スクシニルクロライド (0.6 g) のトルエン (3 ml) 溶液を室温攪拌下徐々に加え、そのまま8時間攪拌した。

反応終了後、水に注ぎ、酢酸エチル50 mlを加え、有機層を2回水洗した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=10:1溶出) で精製することによって、白色粉末を0.4 g得た。

・融点110~117℃

・¹H-NMR (CDCl₃ -TMS), (δ ppm)

1.20~1.30 (m, 3H)、2.37~2.65 (m, 6H)、

3.73 (m, 2H)、7.18~7.70 (m, 8H)

(21) 4-クロロ-4'-エチルチオメチルベンゾフェノン N', N'-ジエトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-225))の合成

4-クロロ-4'-エチルチオメチルベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (1.0 g) をN,N-ジメチルホルムアミドに溶解し、水素化ナトリウム (0.22 g) を加え、室温で30分間攪拌した。

クロロ炭酸エチル (0.6 g) を加えさらに攪拌した。

反応終了後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水、食塩水で順次洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=9:1溶出) で精製し、無色透明油状である目的化合物を0.93 g得た。

(22) 4-クロロ-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-トリクロロメチルスルフェニル-N'-メトキシカルボニルヒドラゾン

(化合物(1B'-226))の合成

4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-メトキシカルボニルヒドラゾン (1.0 g) をテトラヒドロフラン (25 ml) に溶解し、水素化ナトリウム (0.14 g) を加え、室温で30分間撹拌した。

トリクロロメチルスルフェニルクロリド (0.65 g) を加え室温撹拌した。

反応終了後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水、食塩水で順次洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=9:1 溶出) で精製し、淡黄色透明アメ上状である目的化合物を0.36 g 得た。

(23) 4-クロロ-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-(ジ-n-ブチルアミノスルフェニル)-N'-メトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-229) 及び(1B'-230))の合成

4-クロロ-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-メトキシカルボニルヒドラゾン (1.0 g) をジクロロメタン30 ml に溶解し、氷冷下、トリエチルアミン (0.42 g)、ジ-n-ブチルアミノスルフェニルクロリド (0.57 g) を加え、6時間加熱還流した。

反応終了後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=19:1 溶出) で精製し、淡褐色透明固体である目的化合物(1B'-229) を0.24 g と淡黄色ペースト状である目的化合物(1B'-230) (異性体) を0.11 g 得た。

(24) 4-クロロ-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-メトキシカルボニル-N'-メトキシメチルヒドラゾン (化合物(1B'-235))の合成

4-クロロ-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-メトキシカ

ルボニルヒドラゾン (1.0 g) をテトラヒドロフラン (25 ml) に溶解し、水素化ナトリウム (0.17 g) を加え、室温で30分間攪拌した。

クロロメチルメチルエーテルを加えさらに攪拌した。

反応終了後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、酢酸エチルを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=9:1 溶出) で精製し、淡黄色透明アメ上状である目的化合物を0.35 g 得た。

(25) 4-クロロ-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-ホルミル-N'-メトキシカルボニルヒドラゾン (化合物(1B'-250))の合成

4-クロロ-4'-(エチルスルフェニルメチル)ベンゾフェノン N'-エトキシカルボニルヒドラゾン (4.1 g) をテトラヒドロフラン (100 ml) に溶解し、水素化ナトリウム (0.17 g) を加え、室温で30分間攪拌した。ギ酸アセチル (11 g) のエーテル溶液 20 ml を加え室温攪拌した。反応液に水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、酢酸エチルを減圧下で留去した。得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=9:1 溶出) で精製し、粘稠油状物である目的化合物を0.32 g を得た。

(26) 4-クロロフェニル-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-(6-クロロ-3-ピリジルカルボニル)ヒドラゾン (化合物(1B'-387))の合成

4-クロロフェニル-4'-(エチルチオメチル)ベンゾフェノンヒドラゾン (5 g) 及び6-クロロ-3-ピリジンカルボン酸 (4 g) をジクロロメタン (40 ml) に懸濁し、室温攪拌下、1-エチル-3-(3-ジメチルアミノプロピル)カルボジイミド (5 g) を加え、室温で4時間攪拌した。

反応終了後、反応混合物に水を加え、酢酸エチルで目的化合物を抽出し、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後に、溶媒を減圧下で留去した。

得られた油状物をカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, トルエン:酢酸エチル=10:1 溶出) で精製し、ヘキサンより結晶化することによって、無色結晶である目的物6.5 g を得た。

(27) 4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-ジメチルアミノ-1-エチリデンヒドラゾン (化合物(1B"-1) 及び(1B"-2))の合成
化合物(1B'-134) (1.0 g) 及びN,N-ジメチルアセトアミド ジメチルアセタール (1.5 g) の混合物を、6時間加熱還流した。

反応終了後、この反応混合物にトルエン (50 ml) を加えて水で2回洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=5:1 溶出) で精製することによって、黄色結晶の化合物(1B"-1) を0.9 g得、淡黄色粘稠液体の化合物(1b-2)を0.3 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

化合物(1B"-1)

2.00 (s, 3H)、2.36 (s, 3H)、2.90 (s, 6H)、
3.66 (s, 2H)、7.20~7.60 (m, 8H)、

化合物(1B"-2)

2.05 (s, 3H)、2.36 (s, 3H)、2.90 (s, 6H)、
3.70 (s, 2H)、7.23~7.60 (m, 8H)、

(28) 4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン N'-(N,N-ジメチルアミノメチリデン)ヒドラゾン (化合物(1B"-20))の合成

トルエン (30 ml) にN,N-ジメチルホルムアミド (0.44 g) を加え、これにトルエン (5 ml) に溶解したオキシ塩化リン (0.38 g) を25℃で滴下して室温で6時間攪拌した後、黄色の油状物の層が下方に生成したのを確認し、トルエン (5 ml) に溶解した4-クロロ-4'-(メチルチオメチル)ベンゾフェノン ヒドラゾン (0.6 g) を30~35℃で滴下した。

次いで、40℃で3時間攪拌して冷却後、反応液を水に注ぎ、10%水酸化ナトリウム水溶液を加え、トルエン (30 ml) を加えて抽出した。

トルエン層を2回水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=5:1 溶出) で精製することによって、淡黄色粘稠

液体である目的化合物を0.3 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

1. 95~2. 10 (m, 3H)、2. 90 (s, 6H)、

3. 68~3. 72 (m, 2H)、7. 10~7. 60 (m, 8H)、

8. 15 (s, 1H)

(29) 4-クロロ-4' - (メチルチオメチル) ベンゾフェノン N' - (1-メチル-2-ピロリジデン) ヒドラゾン (化合物(1B''-2)) の合成

トルエン (30 ml) に1-メチル-2-ピロリドン (0.6 g) を加え、これにトルエン (5 ml) に溶解したオキシ塩化リン (0.38 g) を25℃で滴下して室温で6時間攪拌した後、黄色の油状物の層が下方に生成したのを確認し、トルエン (5 ml) に溶解した4-クロロ-4' - (メチルチオメチル) ベンゾフェノン ヒドラジン (0.6 g) を30~35℃で滴下した。

次いで、40℃で3時間攪拌して冷却後、反応液を水に注ぎ、10%水酸化ナトリウム水溶液を加え、トルエン (30 ml) を加えて抽出した。

トルエン層を2回水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後にトルエンを減圧下で留去した。

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ワコーゲルC-200, ヘキサン:酢酸エチル=5:1 溶出) で精製することによって、白色固体である目的化合物を0.3 g得た。

・ $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS), (δ ppm)

1. 90~2. 10 (m, 5H)、2. 80 (s, 3H)、

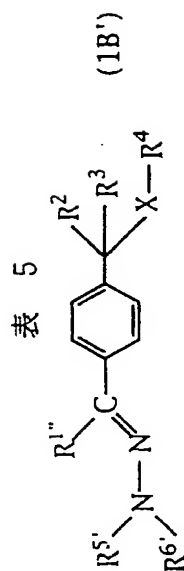
2. 95~3. 03 (t, 2H)、3. 30~3. 38 (t, 2H)、

3. 65 (s, 2H)、7. 10~7. 60 (m, 8H)

(30) 表5中の化合物 (1B) の合成

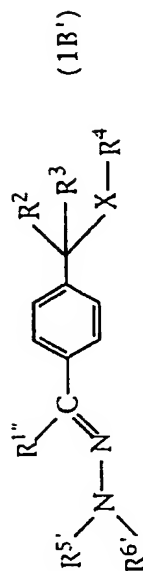
前記(1)~(29)に記載の方法に準じて、表5中の化合物 (1B'), (1B'') 及び (1B''') を合成した。

以上のようにして合成した化合物 (1B) 及びその物性を表5~6に示す。尚、表中、同一置換基の化合物は異性体を意味し、(1B'-1) は(1B'-2) と(1B'-3) の異性体の混合物である。



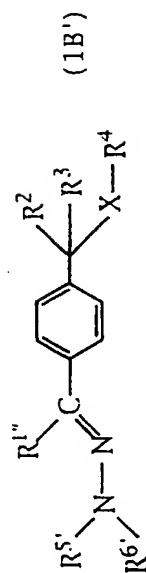
化合物	R ^{1''}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-1	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 103~107°C
1B'-2	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 124~125°C
1B'-3	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 106~107°C
1B'-4	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 132~137°C
1B'-5	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 157~160°C
1B'-6	Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.6138
1B'-7	Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 73~75°C
1B'-8	Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 141~144°C
1B'-9	4-FPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 96~98°C
1B'-10	4-FPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点测定不可
1B'-11	4-FPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 146~153°C
1B'-12	4-BrPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 96~110°C
1B'-13	4-BrPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 114~116°C
1B'-14	4-BrPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-15	4-IPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 97~105°C
1B'-16	4-CF ₃ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 118~122°C

表 5 (続き)



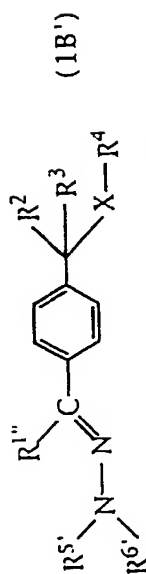
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-17	4-CF ₃ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 133~137°C
1B'-18	4-CF ₃ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-19	4-NO ₂ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-20	4-NO ₂ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-21	4-NO ₂ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-22	4-CNPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-23	4-CNPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-24	4-CNPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-25	4-CH ₃ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-26	4-CH ₃ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-27	4-CH ₃ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-28	4-CH ₃ OPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.6119
1B'-29	4-CH ₃ OPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 156~162°C
1B'-30	4-CH ₃ OPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-31	4-CH ₃ SPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.6436
1B'-32	2, 4-Cl ₂ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.6212

表 5 (続き)



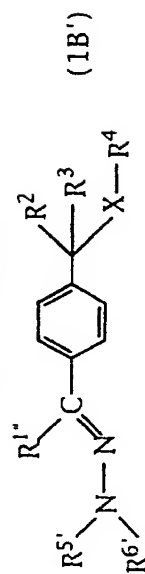
化合物	R ^{1''}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-33	2, 4-Cl ₂ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-34	2, 4-Cl ₂ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-35	3, 4-Cl ₂ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 160~164°C
1B'-36	3, 4-Cl ₂ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-37	3, 4-Cl ₂ Ph	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-38	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 66~67°C
1B'-39	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	表 6 参照
1B'-40	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 187~190°C
1B'-41	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 155~156°C
1B'-42	4-ClPh	H	H	n-C ₃ H ₇	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.6242
1B'-43	4-ClPh	H	H	n-C ₃ H ₇	COOC ₂ H ₅	H	SO	表 6 参照
1B'-44	4-ClPh	H	H	n-C ₃ H ₇	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-45	4-ClPh	H	H	i-C ₃ H ₇	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照
1B'-46	4-ClPh	H	H	i-C ₃ H ₇	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 99~105°C
1B'-47	4-ClPh	H	H	i-C ₃ H ₇	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 158~160°C
1B'-48	4-ClPh	H	H	i-C ₃ H ₇	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 132~135°C

表 5 (続き)



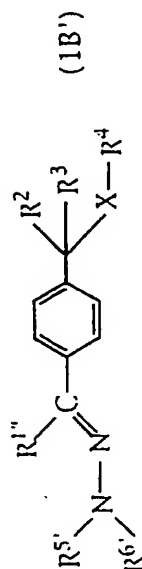
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-49	4-ClPh	H	H	n-C ₄ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D 1.6089
1B'-50	4-ClPh	H	H	n-C ₄ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	SO	表 6 参照
1B'-51	4-ClPh	H	H	n-C ₄ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-52	4-ClPh	H	H	t-C ₄ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D 1.6415
1B'-53	4-ClPh	H	H	t-C ₄ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 125~136°C
1B'-54	4-ClPh	H	H	t-C ₄ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-55	4-ClPh	H	H	CH ₂ CH=CH ₂	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照
1B'-56	4-ClPh	H	H	CH ₂ CH=CH ₂	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-57	4-ClPh	H	H	CH ₂ CH=CH ₂	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-58	4-ClPh	H	H	cyc l-C ₅ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照
1B'-59	4-ClPh	H	H	cyc l-C ₅ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 141~146°C
1B'-60	4-ClPh	H	H	cyc l-C ₅ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 181~183°C
1B'-61	4-ClPh	H	H	cyc l-C ₅ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 129~131°C
1B'-62	4-ClPh	H	H	cyc l-C ₆ H ₁₁	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D 1.6058
1B'-63	4-ClPh	H	H	cyc l-C ₆ H ₁₁	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 130~133°C
1B'-64	4-ClPh	H	H	CH ₂ C≡CH	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D 1.6106

表 5 (続き)



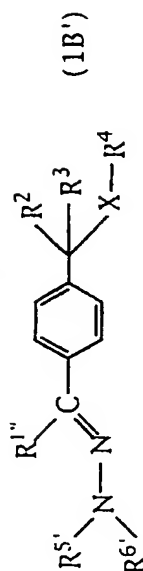
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-65	4-ClPh	H	H	CH ₂ C≡CH	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-66	4-ClPh	H	H	cyc l -C ₆ H ₁₁	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 172~174°C
1B'-67	4-ClPh	H	H	cyc l -C ₆ H ₁₁	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 156~158°C
1B'-68	4-ClPh	H	H	Ph	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D 1.5990
1B'-69	4-ClPh	H	H	Ph	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 137~141°C
1B'-70	4-ClPh	H	H	Ph	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 141~148°C
1B'-71	4-ClPh	H	H	4-ClPh	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-72	4-ClPh	H	H	4-CH ₃ Ph	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-73	4-ClPh	H	H	CH ₂ Ph	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D 1.6277
1B'-74	4-ClPh	H	H	CH ₂ CH ₂ Ph	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-75	4-ClPh	H	H	CHF ₂	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D 1.5945
1B'-76	4-ClPh	H	H	CHF ₂	COOC ₂ H ₆	H	SO	
1B'-77	4-ClPh	H	H	CHF ₂	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-78	4-ClPh	H	H	CF ₃	COOC ₂ H ₆	H	S	n _D 1.5772
1B'-79	4-ClPh	H	H	CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-80	4-ClPh	H	H	CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 157~161°C

表 5 (続き)



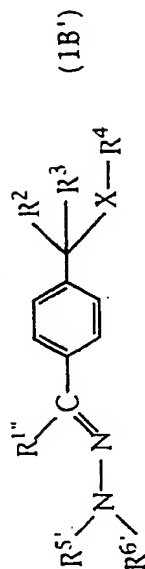
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-81	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.5756
1B'-82	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 167~175°C
1B'-83	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 128~136°C
1B'-84	4-ClPh	H	H	CH ₂ CCl ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-85	4-ClPh	H	H	CH ₂ C ₂ F ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-86	4-ClPh	H	H	CH(CF ₃) ₂	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-87	4-ClPh	H	H	CBrF ₂	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-88	4-ClPh	H	H	CHFCHF ₂	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-89	4-ClPh	H	H	I-C ₃ H ₇	COOCH ₃	H	S	融点 108~110°C
1B'-90	4-ClPh	H	H	CF ₂ CHFCF ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-91	4-ClPh	H	H	CH=CH-CF=CF ₂	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-92	4-ClPh	H	H	CH ₂ CH ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-93	4-ClPh	H	H	CHF ₂	COOCH ₃	H	S	
1B'-94	4-ClPh	H	H	CF ₃	COOCH ₃	H	S	
1B'-95	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOCH ₃	H	S	表 6 参照
1B'-96	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOCH ₃	H	SO	

表 5 (続き)



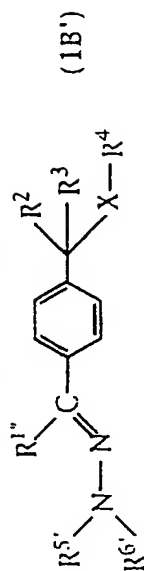
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-97	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOCH ₃	H	SO ₂	
1B'-98	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₃ H ₇ -n	H	S	n _D ²⁰ 1.5848
1B'-99	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₃ H ₇ -n	H	SO	
1B'-100	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₃ H ₇ -n	COOC ₃ H ₇ -n	S	n _D ²⁰ 1.5672
1B'-101	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₄ H ₉ -n	H	S	
1B'-102	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOPh	H	S	
1B'-103	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOCH ₂ Ph	H	S	
1B'-104	4-ClPh	CH ₃	CH ₃	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-105	4-ClPh	CH ₃	CH ₃	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-106	4-ClPh	CH ₃	CH ₃	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-107	4-ClPh	H	CH ₃	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	表6参照
1B'-108	4-ClPh	H	CH ₃	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-109	4-ClPh	H	CH ₃	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-110	4-ClPh	CN	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-111	4-ClPh	CN	CH ₃	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-112	4-ClPh	F	F	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	

表 5 (続き)



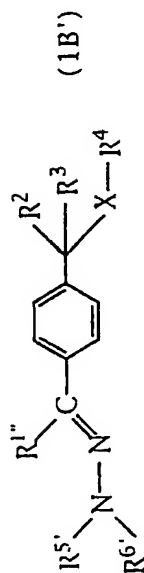
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-113	t-C ₄ H ₉	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.5393
1B'-114	t-C ₄ H ₉	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-115	t-C ₄ H ₉	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-116	i-C ₃ H ₇	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-117	i-C ₃ H ₇	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-118	i-C ₃ H ₇	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-119	CH ₃	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-120	C ₂ H ₅	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-121	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	O	融点 74~76°C
1B'-122	4-ClPh	H	H	CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	O	
1B'-123	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	O	n _D ²⁰ 1.5656
1B'-124	4-ClPh	H	H	CH ₂ CCl ₃	COOC ₂ H ₅	H	O	
1B'-125	4-ClPh	H	H	CH ₂ C ₂ F ₅	COOC ₂ H ₅	H	O	
1B'-126	4-ClPh	H	H	CH(CF ₃) ₂	COOC ₂ H ₅	H	O	
1B'-127	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	NH	融点 129~133°C
1B'-128	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	NCH ₃	

表 5 (続き)



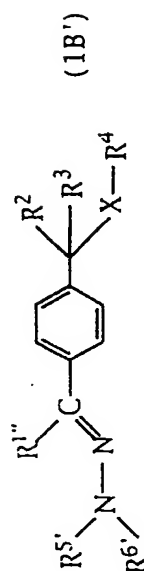
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-129	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	NCOCH ₃	
1B'-130	4-ClPh	H	H	SO ₂ CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	NH	
1B'-131	4-ClPh	H	H	SO ₂ CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	O	
1B'-132	4-ClPh	H	H	SO ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	O	
1B'-133	4-ClPh	H	H	CN	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-134	4-ClPh	H	H	CH ₃	H	H	S	融点 82~88℃
1B'-135	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	H	S	融点 139~142℃
1B'-136	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	H	S	融点 115~119℃
1B'-137	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	H	SO	融点 166~167℃
1B'-138	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	H	SO	融点 128~131℃
1B'-139	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	H	SO ₂	融点 218~219℃
1B'-140	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	COCH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6054
1B'-141	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	COCH ₃	S	n _D ²⁰ 1.5914
1B'-142	4-BrPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	COCH ₃	S	
1B'-143	4-ClPh	H	H	CH ₃	SO ₂ CF ₃	H	S	
1B'-144	4-ClPh	H	H	CH ₃	SO ₂ CF ₃	SO ₂ CF ₃	S	

表 5 (続き)



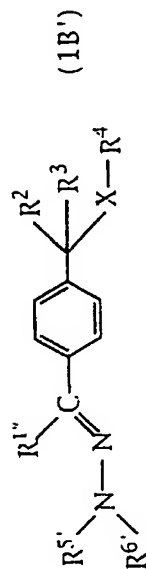
化合物	R ^{1''}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B'-145	4-ClPh	H	H	CH ₃	CONHPh	H	S	
1B'-146	4-ClPh	H	H	CH ₃	CONHPh-4CF ₃	H	S	融点 189~191°C
1B'-147	4-ClPh	H	H	CH ₃	CONHPh-4CF ₃	H	S	融点 197~199°C
1B'-148	4-ClPh	H	H	CH ₃	CSNHPh	H	S	
1B'-149	4-ClPh	H	H	CH ₃	CONHC ₄ H ₉ -t	H	S	
1B'-150	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₂ COOCH ₃	H	S	
1B'-151	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₂ OCH ₃	H	S	
1B'-152	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₂ OCH ₃	COCH ₂ OCH ₃	S	
1B'-153	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₂ SCH ₃	H	S	
1B'-154	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₂ SCH ₃	COCH ₂ SCH ₃	S	
1B'-155	4-ClPh	H	H	CF ₃	COCH ₃	H	S	
1B'-156	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COCH ₃	H	S	
1B'-157	4-ClPh	H	H	CHF ₂	COCH ₃	H	S	
1B'-158	4-ClPh	H	H	CF ₃	SO ₂ CF ₃	H	S	
1B'-159	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	SO ₂ CF ₃	H	S	
1B'-160	4-ClPh	H	H	CHF ₂	SO ₂ CF ₃	H	S	

表 5 (続き)



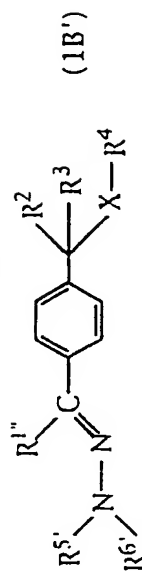
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B' - 161	CH ₃	H	H		COCH ₃	H	NCH ₃	
1B' - 162	CH ₃	H	H		SO ₂ CF ₃	H	NCH ₃	
1B' - 163	CH ₂ CF ₃	H	H		SO ₂ CF ₃	H	O	
1B' - 164	CH ₃	H	H		H	H	S	融点 70~72°C
1B' - 165	CH ₃	H	H		COCH ₃	H	S	
1B' - 166	CH ₃	H	H		CON (CH ₃) ₂	H	S	
1B' - 167	CH ₃	H	H		CSNHCH ₃	H	S	
1B' - 168	C ₂ H ₅	H	H		H	H	S	n _D ²⁰ 1.6345
1B' - 169	C ₂ H ₅	H	H		SO ₂ NHCH ₃	H	S	n _D ²⁰ 1.5998
1B' - 170	CH ₂ COOC ₂ H ₅	H	H		H	H	S	
1B' - 171	CH ₃	H	H		CONHCH ₃	H	S	融点 154~156°C
1B' - 172	CH ₃	H	H		CONHCH ₃	H	S	融点 166~168°C
1B' - 173	CH ₃	H	H		CH ₃	H	S	n _D ²⁰ 1.6478
1B' - 174	CH ₃	H	H		COC ₂ H ₅	H	S	融点 133~135°C
1B' - 175	CH ₃	H	H		COC ₂ H ₅	H	S	融点 110~114°C
1B' - 176	CH ₃	H	H		COCF ₃	H	S	融点 120~124°C

表 5 (続き)



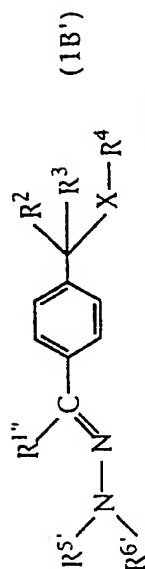
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B' - 177	4-ClPh	H	H	CH ₂ COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.5917
1B' - 178	4-ClPh	H	H	H	COOC ₂ H ₅	H	S	融点測定不可
1B' - 179	4-ClPh	H	H	CH ₂ OCH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.5956
1B' - 180	4-ClPh	H	H	COCH ₂ OCH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.5604
1B' - 181	4-ClPh	H	H	CH ₂ COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 119~121°C
1B' - 182	4-ClPh	H	H	CH ₂ COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 138~140°C
1B' - 183	4-ClPh	H	H	CH ₂ COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 169~171°C
1B' - 184	4-ClPh	H	H	CH ₂ COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	表 6 参照
1B' - 185	4-ClPh	H	H	s-C ₄ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照
1B' - 186	4-ClPh	H	H	s-C ₄ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 89~91°C
1B' - 187	4-ClPh	H	H	s-C ₄ H ₉	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 120~121°C
1B' - 188	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	H	S	表 6 参照
1B' - 189	4-BrPh	H	H	CH ₃	COOCH ₃	H	S	融点 125~131°C
1B' - 190	4-BrPh	H	H	C ₃ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.6277
1B' - 191	4-FPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 65~74°C
1B' - 192	4-ClPh	CH ₃	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照

表 5 (続き)



化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B'-193	4-ClPh	CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B'-194	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₃ H ₇ -i	H	S	
1B'-195	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CO (CH ₂) ₈ CH ₃	H	S	融点 76~79℃
1B'-196	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	COCH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6082
1B'-197	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ CF ₃	H	S	
1B'-198	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ CF ₃	SO ₂ CF ₃	S	
1B'-199	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6404
1B'-200	4-ClPh	H	H	CH ₃	H	COCOOCH ₃	S	融点 146~149℃
1B'-201	4-ClPh	H	H	CH ₃	SO ₂ CH ₃	SO ₂ CH ₃	S	融点 105~113℃
1B'-202	4-ClPh	H	H	CH ₃	H	SO ₂ CH ₃	S	融点 157~158℃
1B'-203	4-ClPh	H	H	CH ₃	H	SO ₂ CH ₃	S	融点 151~153℃
1B'-204	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	COCH ₃	S	融点 105~113℃
1B'-205	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	COCH ₃	S	表 6 参照
1B'-206	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	COCH ₃	SO	表 6 参照
1B'-207	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	COCH ₃	SO ₂	n _D ²⁰ 1.5786

表 5 (続き)




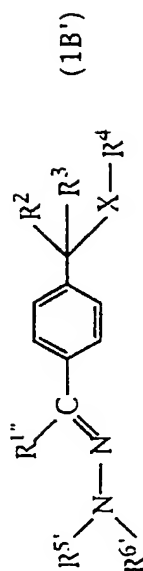
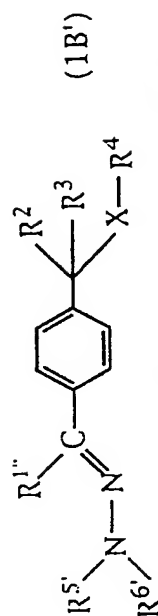
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B'-208	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CHO	H	S	表 6 参照
1B'-209	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	H	SO	融点 129~132°C
1B'-210	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₂ OCOCH ₃	H	S	表 6 参照
1B'-211	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₂ OCH ₃	H	S	表 6 参照
1B'-212	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₂ Cl	H	S	融点 80~85°C
1B'-213	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	N-と共に  を形成		S	融点 110~117°C
1B'-214	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	H	SO	表 6 参照
1B'-215	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	H	SO ₂	表 6 参照
1B'-216	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COCH ₃	S	表 6 参照
1B'-217	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COCH ₃	S	n _D ²⁰ 1.5833
1B'-218	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6036
1B'-219	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6018
1B'-220	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	CH ₃	S	融点 135~138°C
1B'-221	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COCH ₃	SO ₂	表 6 参照
1B'-222	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₃ H ₇ -n	H	S	表 6 参照
1B'-223	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₂ SCH ₃	H	S	融点 100~113°C

表 5 (続き)



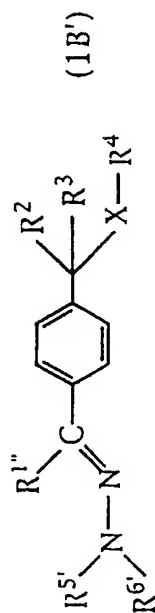
化合物	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B'-224	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COC ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5838
1B'-225	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	表 6 参照
1B'-226	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	SCCl ₃	S	表 6 参照
1B'-227	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₃ H ₇ -i	H	S	表 6 参照
1B'-228	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₃ H ₇ -i	COOC ₃ H ₇ -i	S	n _D ²⁰ 1.5735
1B'-229	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	SN (C ₄ H ₉ -n) ₂	S	融点 78~84℃
1B'-230	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	SN (C ₄ H ₉ -n) ₂	S	表 6 参照
1B'-231	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 78~81℃
1B'-232	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CO—◇	CO—◇	S	n _D ²⁰ 1.6084
1B'-233	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CO—◇	H	S	融点 114~117℃
1B'-234	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	t-C ₄ H ₉	H	S	n _D ²⁰ 1.6037
1B'-235	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	CH ₂ OCH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6007
1B'-236	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOCH ₃	S	n _D ²⁰ 1.5972
1B'-237	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOC ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5838
1B'-238	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	C ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5908
1B'-239	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh	COPh	S	表 6 参照

表 5 (続き)



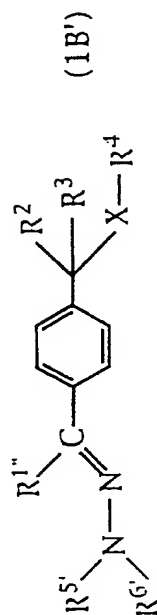
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ^{6'}	X	物 性
1B' - 240	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh	H	S	融点 125~128°C
1B' - 241	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COC ₄ H ₉ -t	H	S	n _D ²⁰ 1.6066
1B' - 242	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	CH ₂ OC ₂ H ₄ OCH ₃	S	n _D ²⁰ 1.5791
1B' - 243	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOCH ₃	SO ₂	融点 153~154°C
1B' - 244	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOCH ₃	SO ₂	表 6 参照
1B' - 245	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COC ₂ H ₅	S	表 6 参照
1B' - 246	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	COCH ₃	S	n _D ²⁰ 1.5978
1B' - 247	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CSSCH ₃	H	S	表 6 参照
1B' - 248	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOPh	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6245
1B' - 249	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOPh	H	S	n _D ²⁰ 1.6312
1B' - 250	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	CHO	S	表 6 参照
1B' - 251	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	H	SO	表 6 参照
1B' - 252	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SO ₂	表 6 参照
1B' - 253	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SO ₂	n _D ²⁰ 1.5696
1B' - 254	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh (2, 6-F ₂)	H	S	表 6 参照
1B' - 255	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	H	SO ₂	融点 190~194°C

表 5 (続き)



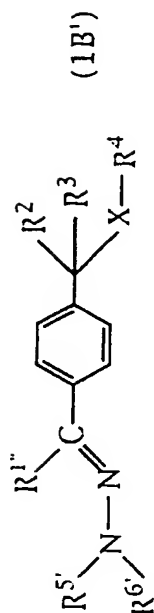
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B' - 256	4-ClPh	CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	
1B' - 257	4-ClPh	CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COCH ₃	S	
1B' - 258	4-ClPh	CH ₃	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	
1B' - 259	4-ClPh	CH ₃	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	COCH ₃	S	
1B' - 260	4-ClPh	CH ₃	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₃	S	
1B' - 261	4-ClPh	CH ₃	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	表 6 参照
1B' - 262	4-ClPh	CH ₃	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 146~149℃
1B' - 263	4-ClPh	CH ₃	H	C ₂ H ₅	H	H	S	
1B' - 264	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COPh	S	
1B' - 265	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COC ₂ H ₅ -t	S	
1B' - 266	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SN (C ₄ H ₉ -n) ₂	S	n _D 1.5717
1B' - 267	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SN (C ₄ H ₉ -n) ₂	SO	
1B' - 268	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SN (C ₄ H ₉ -n) ₂	SO ₂	
1B' - 269	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SCCl ₃	SO	
1B' - 270	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SCCl ₃	SO ₂	

表 5 (続き)



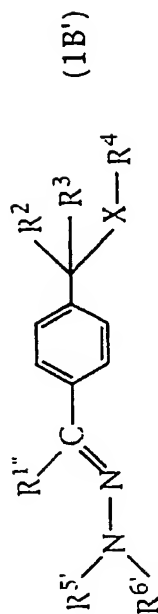
化合物	R ^{1'}	R ^{2'}	R ^{3'}	R ^{4'}	R ^{5'}	R ^{6'}	X	物 性
1B' - 271	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CHO	S	
1B' - 272	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ N(CH ₃) ₂	H	SO	
1B' - 273	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ NHC ₂ H ₅	H	S	融点 75~80°C
1B' - 274	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₃ H ₇ -i	SO	
1B' - 275	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₃ H ₇ -i	S	n _D ²⁰ 1.5718
1B' - 276	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₄ H ₉ -n	S	
1B' - 277	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOPh	S	
1B' - 278	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOCH ₂ Ph	S	
1B' - 279	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SO	n _D ²⁰ 1.5812
1B' - 280	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOC ₃ H ₇ -i	SO	
1B' - 281	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOC ₃ H ₇ -i	S	n _D ²⁰ 1.5846
1B' - 282	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOC ₄ H ₉ -n	S	
1B' - 283	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	表 6 参照
1B' - 284	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	COOCH ₃	S	表 6 参照
1B' - 285	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOCH ₃	COOCH ₃	S	表 6 参照
1B' - 286	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₂ -N ^N	H	S	融点 126~135°C

表 5 (続き)



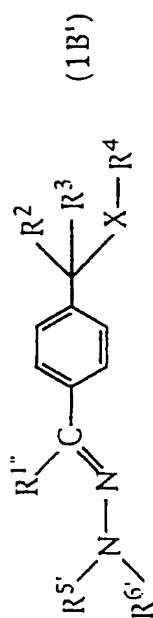
化合物	R''	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B'-287	4-BrPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-288	4-BrPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-289	4-BrPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	
1B'-290	4-BrPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	H	S	
1B'-291	4-FPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B'-292	4-FPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B'-293	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ NHC ₃ H ₇ -n	H	S	表 6 参照
1B'-294	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	SN (CH ₃) COOC ₄ H ₉	S	
1B'-295	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SN (CH ₃) COOC ₂ H ₅	SO	
1B'-296	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SN (C ₃ H ₇ -i) COOC ₂ H ₅	SO ₂	
1B'-297	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	i-C ₃ H ₇	H	S	
1B'-298	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	SN (CH ₃) COOC ₄ H ₉	S	
1B'-299	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	SN (CH ₃) COOC ₂ H ₅	S	
1B'-300	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	SN (CH ₃) COOC ₄ H ₉	S	
1B'-301	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SN (CH ₃) COOC ₂ H ₅	S	

表 5 (続き)



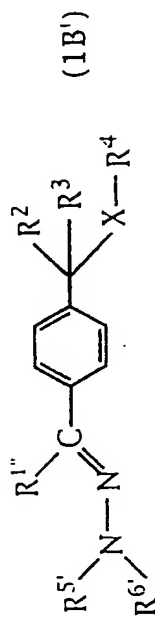
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B' - 302	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	SN (CH ₃) COOC ₂ H ₅	S	
1B' - 303	4-CF ₃ CH ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照
1B' - 304	4-CF ₃ CH ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	融点 56~64°C
1B' - 305	4-CF ₃ CH ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	融点 76~86°C
1B' - 306	4-CF ₃ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照
1B' - 307	4-CF ₃ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B' - 308	4-CF ₃ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B' - 309	4-CF ₃ SO ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B' - 310	4-CF ₃ SO ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B' - 311	4-CF ₃ SO ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B' - 312	4-CH ₃ SO ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B' - 313	4-CH ₃ SO ₂ OPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B' - 314	4-CHF ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	

表 5 (続き)



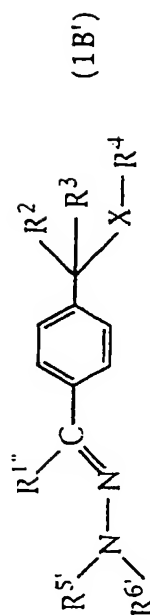
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B' - 315	4-CBrF ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	S	
1B' - 316	4-CBrF ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO	
1B' - 317	4-CBrF ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	H	SO ₂	
1B' - 318	4-CBrF ₂ OPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	COOC ₂ H ₅	S	
1B' - 319	4-ClPh	H	H	CF ₂ CHClF	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照
1B' - 320	4-ClPh	H	H	CF=CF ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照
1B' - 321	4-ClPh	H	H	CF=CHF	COOC ₂ H ₅	H	S	表 6 参照
1B' - 322	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COOCH ₃	H	S	表 6 参照
1B' - 323	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	H	H	S	
1B' - 324	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	
1B' - 325	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	COOCH ₃	S	表 6 参照
1B' - 326	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COOCH ₃	COOCH ₃	S	表 6 参照
1B' - 327	4-ClPh	H	H	CF ₃	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	
1B' - 328	4-BrPh	H	H	CF ₃	COOC ₂ H ₅	H	S	

表 5 (続き)



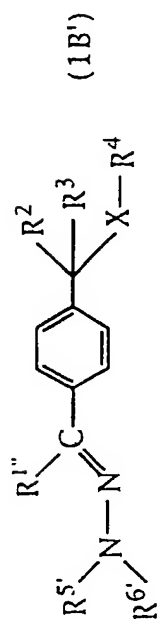
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B'-329	4-ClPh	H	H	CF ₃	COOC ₂ H ₅	COCH ₃	S	
1B'-330	4-ClPh	H	H	CF ₃	COCH ₃	COCH ₃	S	
1B'-331	4-ClPh	H	H	CHF ₂	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	
1B'-332	4-ClPh	H	H	CB r F ₂	COOCH ₃	H	S	
1B'-333	4-ClPh	H	H	CB r F ₂	COOC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	
1B'-334	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	COOC ₄ H ₉ -t	S	表 6 参照
1B'-335	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	COOCH ₂ Ph	S	表 6 参照
1B'-336	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	COOC ₄ H ₉ -n	S	n _D 1.5995
1B'-337	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	COCH ₂ COOC ₂ H ₅	S	表 6 参照
1B'-338	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CH ₂ OC ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	S	n _D 1.5802
1B'-339	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOC ₂ H ₅	SO	表 6 参照
1B'-340	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	COPh (4-Cl)	S	融点 112~114°C
1B'-341	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	COPh (2-Cl)	S	融点 78~85°C
1B'-342	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOCH ₃	COOCH ₂ CH=CH ₂	S	n _D 1.5846
1B'-343	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	S	表 6 参照
1B'-344	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	COOC ₃ H ₇ -i	S	表 6 参照

表 5 (続き)



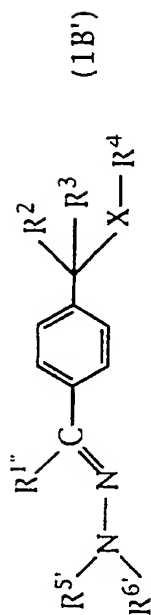
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B' - 345	4-ClPh	H	H	i-C ₃ H ₇	COOCH ₃	COOC ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5803
1B' - 346	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOCH ₃	COOC ₃ H ₇ -i	S	n _D ²⁰ 1.5751
1B' - 347	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOCH ₃	COOC ₃ H ₇ -n	S	n _D ²⁰ 1.5695
1B' - 348	4-ClPh	H	H	CF ₃	COOCH ₃	COOC ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5246
1B' - 349	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOCH ₃	COC (CH ₃) =CH ₂	S	n _D ²⁰ 1.5959
1B' - 350	4-ClPh	H	H	CH ₃	H	H	SO	表 6 参照
1B' - 351	4-ClPh	H	H	CH ₃	H	H	SO ₂	融点 129~142℃
1B' - 352	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₃ H ₇ -n	COOC ₃ H ₇ -i	S	表 6 参照
1B' - 353	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ CH ₂ F	S	n _D ²⁰ 1.5856
1B' - 354	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ CH ₂ Br	S	n _D ²⁰ 1.5999
1B' - 355	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ CH ₂ Cl	S	n _D ²⁰ 1.5926
1B' - 356	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	C ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5871
1B' - 357	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	C ₄ H ₉ -n	S	n _D ²⁰ 1.5762
1B' - 358	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	CH ₂ Ph	S	n _D ²⁰ 1.6326

表 5 (続き)



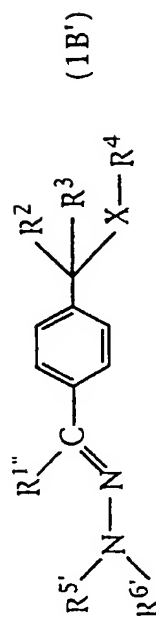
化合物	R ^{1''}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B' - 359	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SN(C ₃ H ₇ -i)COOC ₂ H ₅	S	融点 83~84.5℃
1B' - 360	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ NHC ₃ H ₇ -i	H	S	n _D ²⁰ 1.6038
1B' - 361	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ NHCH ₂ Ph	H	S	表 6 参照
1B' - 362	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	H	S	n _D ²⁰ 1.6156
1B' - 363	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	H	SO	
1B' - 364	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	H	SO ₂	
1B' - 365	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	S	n _D ²⁰ 1.5860
1B' - 366	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOCH ₂ CH=CH ₂	S	n _D ²⁰ 1.6088
1B' - 367	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	SO	n _D ²⁰ 1.5785

表 5 (続き)



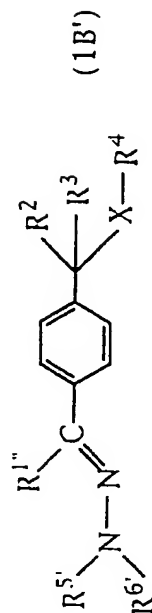
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B'-368	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	SO ₂	n _D ²⁰ 1.5678
1B'-369	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ OC ₃ H ₇ -n	S	n _D ²⁰ 1.5689
1B'-370	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ OC ₄ H ₉ -n	S	n _D ²⁰ 1.5640
1B'-371	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ CH ₂ OC ₂ H ₅	S	n _D ^{20.8} 1.5761
1B'-372	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	CH ₂ OC ₂ H ₅	S	n _D ^{20.7} 1.5844
1B'-373	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃	CH ₂ OC ₂ H ₅	S	n _D ^{20.5} 1.6055
1B'-374	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ CH ₂ SPH	S	n _D ^{21.0} 1.6157
1B'-375	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ SPH	S	n _D ²¹ 1.6276
1B'-376	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ SCH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6013
1B'-377	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₂ NHCOCH ₃	H	S	表6 参照
1B'-378	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CO(CH ₂) ₂ NHCOCH ₃	H	S	表6 参照

表 5 (続き)



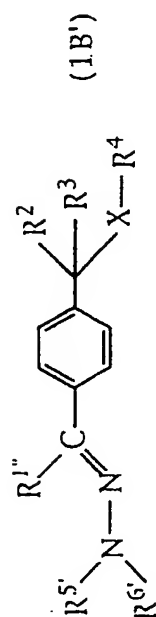
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B' - 379	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅		H	S	表 6 参照
1B' - 380	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅		H	S	融点 81~85℃
1B' - 381	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅		H	S	表 6 参照
1B' - 382	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅		H	S	融点 81~91℃
1B' - 383	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅		H	SO ₂	融点 167~168℃
1B' - 384	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅		H	SO	融点 88~95℃
1B' - 385	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅		COOC ₂ H ₅	S	融点 108~113℃
1B' - 386	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅		COOCH ₃	S	融点 139~140℃
1B' - 387	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅		H	S	融点 99~105℃
1B' - 388	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COCH ₃		S	表 6 参照
1B' - 389	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh(3-CH ₃ ,5-CH ₃)	H	S	融点 99~105℃

表 5 (続き)



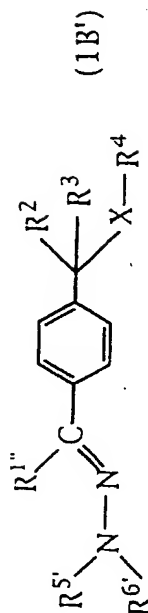
化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B'-390	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh (2-OH)	H	S	融点 184~186°C
1B'-391	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh (4-CF ₃)	H	S	融点 92~98°C
1B'-392	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh (3-Cl)	H	S	融点 109~111°C
1B'-393	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh (3-Cl)	H	SO ₂	融点 165~167°C
1B'-394	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh (4-OCH ₃)	H	S	融点 83~102°C
1B'-395	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CO (CH ₂) ₆ CH ₃	H	S	融点 86~89°C
1B'-396	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COPh (2, 4-F ₂)	H	S	融点 133~136°C
1B'-397	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	COPh (4-Cl)	S	表 6 参照
1B'-398	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	H	H	SO ₂	融点 119~121°C
1B'-399	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	COOCH ₃	SO	n _D ²⁰ 1.5885
1B'-400	4-ClPh	H	H	CH ₃	COOC ₂ H ₅	CH ₃ OC ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5846
1B'-401	4-ClPh	H	H	CH ₃	COPh (3-Cl)	H	S	融点 125~128°C
1B'-402	4-ClPh	H	H	CH ₂ CN	COOC ₂ H ₅	H	S	融点 108~110°C
1B'-403	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	SN(C ₂ H ₅) ₂ CH ₂ CH(COOC ₂ H ₅) ₂	S	n _D ²⁵ 1.5630

表 5 (続き)

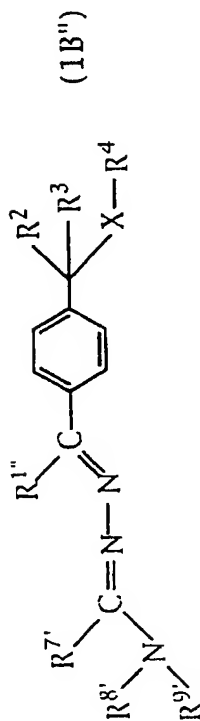


化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B'-404	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	-C(=O)-CH ₂ -	H	SO ₂	融点 127~130℃
1B'-405	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	-C(=O)-CH ₂ -	H	SO	表 6 参照
1B'-406	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	-C(=O)-CH ₂ -	COOCH ₃	S	表 6 参照
1B'-407	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	-C(=O)-CH ₂ -	COOC ₂ H ₅	S	表 6 参照
1B'-408	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	-C(=O)-CH ₂ -	H	S	表 6 参照
1B'-409	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	-C(=O)-CH ₂ -	H	S	表 6 参照
1B'-410	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	-C(=O)-CH ₂ -	H	S	融点 91~100℃
1B'-411	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	i-C ₃ H ₇	COOC ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5794
1B'-412	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	H	SO	表 6 参照
1B'-413	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	H	SO ₂	表 6 参照
1B'-414	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ NHCH ₃	H	SO	表 6 参照
1B'-415	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ NHCH ₃	H	S	融点 74~82℃

表 5 (続き)

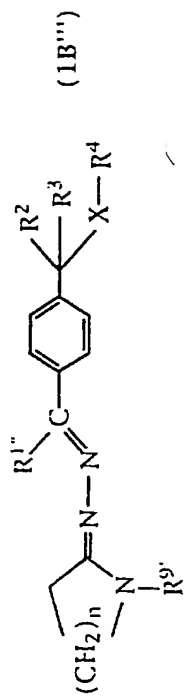


化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	X	物 性
1B'-416	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ N (CH ₃) ₂	COOC ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5830
1B'-417	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	COOCH ₂ CH=CH ₂	S	n _D ²⁰ 1.5802
1B'-418	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOC ₂ H ₅	CH ₂ COOC ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5700
1B'-419	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ N (CH ₃) ₂	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6024
1B'-420	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	SO ₂ N (CH ₃) C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5935
1B'-421	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	COOC ₂ H ₅	SO ₂	表 6 参照
1B'-422	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	COOC ₂ H ₅	COOCH ₂ CH=CH ₂	S	n _D ²⁰ 1.5561
1B'-423	4-ClPh	H	H	CN	COOC ₂ H ₅	H	S	n _D ²⁰ 1.6061
1B'-424	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CH ₂ CH=CH ₂	COOC ₂ H ₅	S	n _D ²⁰ 1.5912
1B'-425	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	i-C ₃ H ₇	COOCH ₂ CH=CH ₂	S	n _D ^{24.4} 1.5836
1B'-426	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	i-C ₃ H ₇	COOC ₂ H ₅	SO	n _D ^{24.7} 1.5854
1B'-427	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	COOCH ₃	SN (C ₁ H ₉ -n) ₂	S	表 6 参照



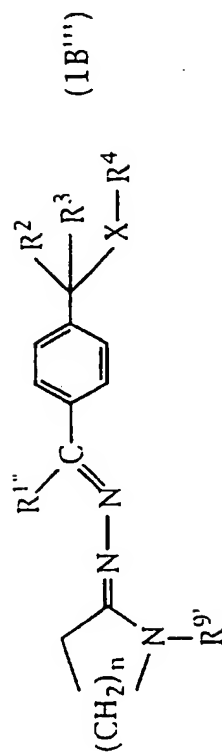
化合物	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁷	R ⁸	R ⁹	X	物 性
1B"-33	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	O	
1B"-34	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	NH	
1B"-35	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	NCH ₃	
1B"-36	4-ClPh	H	H	CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	
1B"-37	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	n _D ²⁰ 1.6627
1B"-38	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	表6参照
1B"-39	4-ClPh	H	H	CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	SO	
1B"-40	4-ClPh	H	H	CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	SO ₂	
1B"-41	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	SO	
1B"-42	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	SO ₂	
1B"-43	4-ClPh	H	H	CBrF ₂	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	
1B"-44	4-BrPh	H	H	CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	
1B"-45	4-FPh	H	H	CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	
1B"-46	4-BrPh	H	H	CH ₂ CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	
1B"-47	4-FPh	H	H	CH ₂ CF ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	
1B"-48	4-ClPh	H	H	CBrF ₂	CH ₃	CH ₃	CH ₃	S	

表 5 (続き)



化合物	R ^{1''}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{5'}	n	X	物 性
1B'''-1	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	1	S	
1B'''-2	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	2	S	融点 111~114°C
1B'''-3	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	2	SO	
1B'''-4	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CH ₃	2	SO ₂	
1B'''-5	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CH ₃	2	S	
1B'''-6	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CH ₃	2	SO	
1B'''-7	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CH ₃	2	SO ₂	
1B'''-8	4-ClPh	H	H	n-C ₃ H ₇	CH ₃	2	S	
1B'''-9	4-ClPh	H	H	i-C ₃ H ₇	CH ₃	2	S	
1B'''-10	4-ClPh	H	H	Ph	CH ₃	2	S	
1B'''-11	4-ClPh	H	H	CH ₂ CH=CH ₂	CH ₃	2	S	
1B'''-12	4-ClPh	H	H	cycl-C ₅ H ₉	CH ₃	2	S	
1B'''-13	4-ClPh	H	H	cycl-C ₆ H ₁₁	CH ₃	2	S	
1B'''-14	4-ClPh	H	H	CH ₃	C ₂ H ₅	2	S	
1B'''-15	4-ClPh	H	H	CH ₃	CHO	2	S	
1B'''-16	4-ClPh	H	H	CH ₃	COCH ₃	2	S	

表 5 (続き)



化合物	R ^{1'}	R ²	R ³	R ⁴	R ^{9'}	n	X	物 性
1B'''-17	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	3	S	
1B'''-18	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	4	S	
1B'''-19	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	5	S	
1B'''-20	4-ClPh	H	H	C ₂ H ₅	CH ₃	2	O	
1B'''-21	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	2	NCH ₃	
1B'''-22	4-ClPh	H	H	CH ₃	CH ₃	2	NH	
1B'''-23	4-ClPh	H	H	CHF ₂	CH ₃	2	S	
1B'''-24	4-ClPh	H	H	CH ₂ CF ₃	CH ₃	2	S	
1B'''-25	4-ClPh	H	H	CH ₃	H	2	S	
1B'''-26	4-ClPh	H	H	CF ₃	CH ₃	2	S	
1B'''-27	4-ClPh	H	H	CBrF ₂	CH ₃	2	S	

表 6

化合物	物 性: $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)
2 B-67	1.25 (t, 3H), 2.50 (q, 2H), 3.95 (s, 2H), 7.40-7.80 (m, 8H)
1B'-10	1.20-1.40 (t, 3H), 2.40-2.70 (m, 3H), 3.90-4.15 (m, 2H), 4.20-4.40 (t, 2H), 7.10-7.70 (m, 8H), 7.80 (s, 1H)
1B'-39	1.32 (t, 3H), 1.41 (t, 3H), 2.53-2.87 (m, 2H), 3.90-4.07 (m, 2H), 4.18-4.40 (m, 2H), 7.10-7.37 (m, 4H), 7.46-7.65 (m, 4H), 7.74-7.84 (br.s, 1H)
1B'-43	1.12 (t, 3H), 1.31 (t, 3H), 1.80-1.95 (m, 2H), 2.63-2.82 (m, 2H), 4.01 (q, 2H), 4.18-4.35 (m, 2H), 7.20-7.33 (m, 4H), 7.45-7.60 (m, 4H), 7.78-7.86 (br.s, 1H)
1B'-45	1.22-1.33 (m, 9H), 2.76-2.94 (m, 1H), 3.72 (s, 1H), 3.82 (s, 1H), 4.25-4.28 (m, 2H), 7.17-7.81 (m, 9H)
1B'-50	0.98 (t, 3H), 1.20-2.38 (m, 3H), 1.40-1.64 (m, 2H), 1.70-1.86 (m, 2H), 2.65-2.80 (m, 2H), 4.00 (q, 2H), 4.15-4.35 (m, 2H), 7.10-7.35 (m, 4H), 7.40-7.60 (m, 4H), 7.80 (br.s, 1H)
1B'-55	1.10-1.50 (m, 3H), 3.00-3.15 (m, 2H), 3.64 (s, 1H), 3.73 (s, 1H), 4.25-4.28 (m, 2H), 5.03-5.20 (m, 2H), 5.70-5.91 (m, 1H), 7.15-7.90 (m, 9H)
1B'-58	1.31 (m, 3H), 1.40-2.10 (m, 8H), 2.85-3.14 (m, 1H), 3.72-3.81 (s, 2H), 4.13-4.36 (m, 2H), 7.04-7.90 (m, 9H)

表 6 (続き)

化合物	物 性: $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)
1B'-95	1.98-2.10 (m, 3H), 3.65-4.85 (m, 5H), 7.10-7.60 (m, 8H), 8.70-8.85 (s, 1H)
1B'-107	1.17 (m, 3H), 1.51-1.67 (m, 3H), 1.88-2.01 (s, 3H), 3.83-3.97 (m, 1H), 4.26-4.28 (m, 2H), 7.19-7.83 (m, 9H)
1B'-184	1.18-1.40 (m, 6H), 3.69 (q, 2H), 4.06-4.39 (m, 6H), 7.13-7.63 (m, 8H), 7.80 (br.s, 1H)
1B'-185	0.85-1.05 (m, 3H), 1.15-1.74 (m, 8H), 2.47-2.78 (m, 1H), 3.71-3.81 (s, 2H), 4.14-4.38 (m, 2H), 7.08-7.90 (m, 9H)
1B'-188	1.19-1.33 (t, 3H), 2.35-2.58 (m, 2H), 3.70-3.82 (m, 5H), 7.10-7.90 (m, 9H)
1B'-192	1.11-1.45 (m, 6H), 1.53-1.65 (m, 3H), 2.26-2.48 (m, 2H), 3.95-4.06 (m, 1H), 4.15-4.40 (m, 2H), 7.18-7.82 (m, 9H)
1B'-205	1.30 (t, 3H), 2.43 (s, 3H), 2.55 (q, 2H), 3.80 (s, 2H), 7.17-7.56 (m, 8H), 8.40 (s, 1H) (その他の物性: 油状物)
1B'-206	2.13 (s, 3H), 2.38 (s, 3H), 2.50 (s, 3H), 3.98 (s, 2H), 7.30-7.80 (m, 8H)
1B'-208	1.20-1.34 (m, 3H), 2.37-2.59 (m, 2H), 3.70-3.80 (m, 2H), 7.10-7.60 (m, 8H), 8.35-8.52 (m, 1H), 8.82-8.88 (m, 1H)
1B'-210	1.20-1.35 (m, 3H), 2.20 (s, 3H), 2.37-2.59 (m, 2H), 3.70-3.80 (m, 2H), 5.23 (s, 2H), 7.15-7.60 (m, 8H), 8.35-8.43 (m, 1H)

表 6 (続き)

化合物	物 性 : $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)
1B'-211	1.20-1.35 (m, 3H), 2.38-2.58 (m, 2H), 3.22-4.65 (m, 7H), 7.08-7.62 (m, 8H), 8.29-9.35 (m, 1H)
1B'-214	1.2-1.50 (m, 3H), 2.5-2.85 (m, 2H), 3.85 (s, 3H), 3.95-4.2 (m, 2H), 7.15-7.70 (m, 8H), 7.5-7.9 (m, 1H)
1B'-215	1.2-1.55 (m, 3H), 2.8-3.1 (m, 2H), 3.85 (s, 3H), 4.1-4.3 (m, 2H), 7.20-7.70 (m, 8H), 7.85 (s, 1H)
1B'-216	1.20-1.30 (m, 3H), 2.26-2.62 (m, 5H), 3.73-3.81 (m, 5H), 7.08-7.69 (m, 8H)
1B'-221	1.25-1.41 (m, 6H), 2.32, 2.37 (d, 3H), 2.90-2.94 (m, 2H), 4.19-4.27 (m, 4H), 7.12-7.71 (m, 8H)
1B'-222	0.82-1.01 (m, 3H), 1.18-1.35 (m, 3H), 1.60-1.82 (m, 2H), 2.36-2.61 (m, 2H), 3.68-3.81 (m, 2H), 4.10-4.22 (m, 2H), 7.10-7.87 (m, 9H)
1B'-225	1.21-1.34 (m, 9H), 2.38-2.50 (m, 2H), 3.74 (s, 2H), 4.13-4.23 (m, 4H), 7.08-7.63 (m, 8H)
1B'-226	1.20-1.29 (m, 3H), 2.38-2.53 (m, 2H), 3.73, 3.78 (d, 2H), 3.87 (s, 3H), 7.15-7.58 (m, 8H)
1B'-227	1.19-1.34 (m, 9H), 2.35-2.60 (m, 2H), 3.70-3.85 (m, 2H), 4.98-5.12 (m, 1H), 7.10-7.87 (m, 9H) (その他の物性 : 融点 (99-108°C))
1B'-230	(その他の物性 : CI-MS (M^+ : 522))

表 6 (続き)

化合物	物 性: $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)
1B'-239	1.20-1.30 (m, 3H), 2.38-2.58 (m, 2H), 3.72-3.80 (m, 2H), 7.27-8.20 (m, 18H)
1B'-244	1.37-1.51 (m, 3H), 2.87-3.07 (m, 2H), 3.73 (s, 3H), 3.75 (s, 3H), 4.25 (d, 2H), 7.14-7.78 (m, 8H)
1B'-245	0.90-1.00 (m, 3H), 1.23 (t, 3H), 2.39-2.48 (m, 2H), 2.58-2.74 (m, 2H), 3.73 (s, 2H), 3.77 (s, 3H), 7.08-7.65 (m, 8H)
1B'-247	1.20-1.35 (m, 3H), 2.37-2.72 (m, 5H), 3.70-3.81 (m, 2H), 7.15-7.60 (m, 8H), 9.70-9.85 (m, 1H)
1B'-250	1.18-1.29 (m, 3H), 2.35-2.61 (m, 2H), 3.73 (s, 2H), 3.88 (s, 3H), 7.11-7.65 (m, 8H), 8.90 (s, 1H)
1B'-251	1.25-1.55 (m, 3H), 2.5-2.85 (m, 2H), 3.85-4.2 (m, 2H), 5.5 (s, 2H), 7.20-7.60 (m, 8H)
1B'-252	1.22-1.43 (m, 9H), 2.84-2.97 (m, 2H), 4.13-4.30 (m, 6H), 7.15-7.71 (m, 8H)
1B'-254	1.18-1.35 (m, 3H), 2.35-2.60 (m, 2H), 3.68-3.81 (m, 2H), 6.89-7.61 (m, 11H), 8.68-8.80 (m, 1H)
1B'-261	1.21-1.37 (m, 6H), 1.71-1.80 (m, 3H), 2.28-2.62 (m, 2H), 3.67-3.92 (m, 1H), 4.26-4.29 (m, 2H), 7.16-7.68 (m, 8H), 7.76 (br.s, 1H)
1B'-283	1.07-1.34 (m, 6H), 2.01-2.03 (m, 3H), 3.69-3.75 (m, 2H), 4.08-4.30 (m, 4H), 7.10-7.76 (m, 8H)

表 6 (続き)

化合物	物 性 : $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 - TMS) . (δ p p m)
1B'-284	1.12-1.34 (m, 3H), 1.90-2.10 (m, 3H), 3.60-4.27 (m, 7H), 7.07-7.78 (m, 8H)
1B'-285	1.95-2.10 (m, 3H), 3.60-3.93 (m, 8H), 7.08-7.78 (m, 8H)
1B'-293	0.85-1.05 (m, 3H), 1.20-1.35 (m, 3H), 1.51-1.66 (m, 2H), 2.35-2.60 (m, 2H), 2.97-3.15 (m, 2H), 3.68-3.82 (m, 2H), 5.25-5.38 (m, 1H), 7.14-7.62 (m, 9H)
1B'-303	1.19-1.33 (m, 6H), 2.37-2.59 (m, 2H), 3.70-3.80 (d, 2H), 4.26-4.49 (m, 4H), 6.86-7.56 (m, 8H), 7.76 (br.s, 1H)
1B'-306	1.14-1.50 (m, 6H), 2.32-2.62 (m, 2H), 3.71-3.80 (m, 2H), 4.16-4.42 (m, 2H), 7.10-7.91 (m, 9H)
1B'-319	1.13-1.50 (m, 3H), 4.05-4.39 (m, 4H), 6.01-6.32 (m, 1H), 7.06-7.82 (m, 9H)
1B'-320	1.10-1.49 (br.s, 3H), 3.93-4.40 (m, 4H), 7.08-7.90 (m, 9H)
1B'-321	1.12-1.50 (br, 3H), 3.88-4.42 (m, 4H), 7.07-8.92 (m, 10H)
1B'-322	2.81-3.08 (m, 2H), 3.69-4.00 (m, 5H), 7.08-7.90 (m, 9H)
1B'-325	1.14-1.31 (m, 3H), 2.85-3.05 (m, 2H), 3.69-4.23 (m, 7H), 7.13-7.72 (m, 8H)
1B'-326	2.83-3.04 (m, 2H), 3.69-3.94 (m, 8H), 7.14-7.72 (m, 8H)

表 6 (続き)

化合物	物 性 : $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)
1B'-334	1.35-1.57 (m, 12H), 2.36-2.62 (m, 2H), 3.70-3.82 (m, 2H), 7.18-7.70 (m, 9H)
1B'-335	1.11-1.30 (m, 3H), 2.31-2.57 (m, 2H), 3.68-3.80 (m, 2H), 5.23 (br.s, 2H), 7.15-7.90 (m, 14H)
1B'-357	1.20-1.35 (m, 6H), 2.38-2.50 (m, 2H), 3.70-3.85 (m, 4H), 4.20-4.30 (m, 2H), 7.15-7.60 (m, 8H), 8.32-8.46 (m, 1H)
1B'-339	1.30-1.60 (m, 6H), 2.55-2.80 (m, 2H), 3.70 (d, 3H), 3.95 (d, 2H), 4.05-4.30 (m, 2H), 7.10-7.90 (m, 9H)
1B'-343	1.14-1.25 (m, 3H), 1.90-2.05 (m, 3H), 3.69-3.75 (m, 2H), 4.12-4.27 (m, 2H), 4.53-4.68 (m, 2H), 5.16-5.37 (m, 2H), 5.77-5.96 (m, 1H), 7.08-7.78 (m, 8H)
1B'-344	1.04-1.42 (m, 9H), 1.96-2.05 (m, 3H), 3.69-3.75 (m, 2H), 4.10-4.35 (m, 2H), 4.84-5.00 (m, 1H), 7.08-7.80 (m, 8H)
1B'-350	2.44-2.60 (m, 3H), 3.89-4.06 (m, 2H), 5.53 (s, 2H), 7.19-7.52 (m, 8H)
1B'-352	0.78-1.04 (m, 3H), 1.10-1.33 (m, 6H), 1.54-1.78 (m, 2H), 1.95-2.10 (m, 3H), 3.62-3.80 (m, 2H), 4.10-4.18 (m, 2H), 4.83-5.05 (m, 1H), 6.99-7.82 (m, 8H)
1B'-361	1.20-1.35 (m, 3H), 2.37-2.60 (m, 2H), 3.68-3.80 (m, 2H), 4.26-4.33 (m, 2H), 5.09-5.22 (br, 1H), 7.01-7.58 (m, 14H)

表 6 (続き)

化合物	物 性: $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)
1B'-377	1.20-1.38 (m, 3H), 2.12 (s, 3H), 2.38-2.60 (m, 2H), 3.70-3.88 (m, 2H), 4.58 (s, 2H), 6.38 (s, 1H), 7.25-7.60 (m, 8H), 8.38-8.48 (m, 1H)
1B'-378	1.20-1.38 (m, 3H), 1.85-2.05 (m, 5H), 2.40-4.60 (m, 2H), 2.90-3.00 (m, 2H), 3.40-3.52 (m, 2H), 3.72-3.84 (m, 2H), 6.15 (s, 1H), 7.18-7.60 (m, 8H), 8.30-8.42 (m, 1H)
1B'-379	1.20-1.39 (m, 3H), 2.38-2.60 (m, 2H), 3.71-3.88 (m, 2H), 7.25-8.40 (m, 12H), 10.95 (d, 1H)
1B'-381	1.20-1.40 (m, 3H), 2.38-2.70 (m, 2H), 3.70-3.90 (m, 4H), 7.08-11.15 (m, 13H)
1B'-388	1.25 (t, 3H), 2.38 (t, 3H), 2.48 (q, 2H), 3.75 (s, 2H), 7.18-7.50 (m, 9H), 8.12 (d, 1H), 8.89 (s, 1H)
1B'-397	1.08-1.30 (m, 6H), 2.30-2.50 (m, 2H), 3.71-3.81 (m, 2H), 4.05-4.25 (m, 2H), 7.05-7.75 (m, 12H)
1B'-405	1.27-1.52 (m, 3H), 2.50-2.90 (m, 2H), 3.75-4.43 (m, 4H), 7.10-11.20 (m, 13H)

表 6 (続き)

化合物	物 性 : $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)
1B'-406	1.30 (t, 3H), 1.48 (q, 2H), 3.71 (s, 5H), 4.11 (s, 2H), 7.20-7.71 (m, 11H), 8.60 (d, 1H)
1B'-407	1.17-1.31 (m, 6H), 2.40-2.50 (m, 2H), 3.71 (s, 2H), 4.00 (s, 2H), 4.10-4.26 (m, 2H), 7.11-7.65 (m, 11H), 8.59 (d, 1H)
1B'-408	1.20-1.33 (m, 3H), 2.42-2.55 (m, 2H), 3.73-3.78 (d, 2H), 4.18 (s, 2H), 7.16-7.76 (m, 10H), 8.37-8.65 (m, 3H)
1B'-409	1.22-1.31 (m, 3H), 2.42-2.55 (m, 2H), 3.73-3.79 (d, 2H), 4.17 (s, 2H), 7.16-7.56 (m, 10H), 8.37-8.58 (m, 3H)
1B'-412	1.30-1.47 (m, 3H), 2.50-2.88 (m, 2H), 3.91-4.08 (m, 2H), 4.69-4.76 (d, 2H), 5.20-5.41 (m, 2H), 5.88-6.08 (m, 1H), 7.20-7.64 (m, 8H), 7.75-7.90 (d, 1H)
1B'-413	1.32-1.52 (m, 3H), 2.80-3.08 (m, 2H), 4.20-4.32 (d, 2H), 4.69-4.76 (d, 2H), 5.21-5.42 (m, 2H), 5.83-6.08 (m, 1H), 7.17-7.90 (m, 9H)
1B'-414	1.24-1.50 (m, 3H), 2.56-2.90 (m, 5H), 3.95-4.08 (m, 2H), 4.74-4.89 (m, 1H), 7.16-7.63 (m, 9H)

表 6 (続き)

化合物	物 性 : $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 -TMS), (δ ppm)
1B'-421	1.21-1.26 (m, 3H), 1.36-1.43 (m, 3H), 2.88-2.96 (m, 2H), 3.74-3.77 (d, 3H), 4.13-4.30 (m, 4H), 7.15-7.71 (m, 8H)
1B'-427	0.80-0.93 (m, 6H), 1.18-1.32 (m, 7H), 1.47-1.63 (m, 4H), 2.40-2.57 (m, 2H), 2.80-3.30 (br, 4H), 3.70-3.82 (m, 5H), 7.12-7.60 (m, 8H)
1B'-38	2.26-2.45 (m, 3H), 2.77-3.03 (m, 8H), 3.72-3.90 (m, 2H), 7.10-7.64 (m, 8H)

実施例5 (製剤の調製)

(1) 粒剤の調製

化合物(1A-1)を5重量部、ベントナイト35重量部、タルク57重量部、ネオベレックスパウダー(商品名;花王株式会社製)1重量部及びリグニンスルホン酸ソーダ2重量部を均一に混合し、次いで少量の水を添加して混練した後、造粒、乾燥して粒剤を得た。

(2) 水和剤の調製

化合物(1A-1)を10重量部、カオリン70重量部、ホワイトカーボン18重量部、ネオベレックスパウダー(商品名;花王株式会社製)1.5重量部及びデモール(商品名;花王株式会社製)0.5重量部とを均一に混合し、次いで粉碎して水和剤を得た。

(3) 乳剤の調製

化合物(1A-1)を20重量部及びキシレン70重量部に、トキサノン(商品名;三洋化成工業製)10重量部を加えて均一に混合し、溶解して乳剤を得た。

(4) 粉剤の調製

化合物(1A-1)を5重量部、タルク50重量部及びカオリン45重量部を均一に混合して粉剤を得た。

実施例6 (効力試験)

(1) ハスモンヨトウに対する効力試験

実施例5に準じて調製した表2及び5に示す化合物(1)の各水和剤を界面活性剤(0.01%)を含む水で各々500ppmに希釈し、これらの各薬液中にダイズ本葉を30秒間浸漬し、各プラスチックカップに1枚ずつ入れて風乾した。

これらのカップ内に各々10頭のハスモンヨトウ(2齢幼虫)を放って蓋をし、25℃の定温室に放置し、2日後に各カップ内の生死虫数を数えて殺虫率を求めた。

殺虫効果の評価は、死虫率の範囲によって、4段階(A:100%, B:100未満~80%, C:80未満~60%, D:60%未満)で示した。

これらの結果を表7に示す。

表 7

化合物	効果	化合物	効果	化合物	効果	化合物	効果	化合物	効果
1A-1	A	1B'-40	A	1B'-196	A	1B'-251	A	1B'-362	A
1A-2	A	1B'-41	A	1B'-200	A	1B'-252	A	1B'-365	A
1A-3	A	1B'-42	A	1B'-202	A	1B'-253	A	1B'-366	A
1A-4	A	1B'-43	A	1B'-204	B	1B'-254	A	1B'-367	A
1A-5	A	1B'-45	A	1B'-205	A	1B'-255	A	1B'-368	A
1A-6	A	1B'-46	A	1B'-206	A	1B'-266	A	1B'-369	A
1A-7	A	1B'-47	A	1B'-207	A	1B'-273	A	1B'-370	A
1A-8	A	1B'-48	A	1B'-208	A	1B'-275	A	1B'-371	A
1A-9	A	1B'-50	A	1B'-209	A	1B'-281	A	1B'-372	A
1A-12	A	1B'-55	A	1B'-210	A	1B'-283	A	1B'-373	A
1A-13	A	1B'-64	A	1B'-211	A	1B'-284	A	1B'-374	A
1A-14	A	1B'-68	B	1B'-212	A	1B'-285	A	1B'-375	A
1A-16	A	1B'-73	A	1B'-214	A	1B'-286	A	1B'-376	A
1A-20	A	1B'-75	A	1B'-215	A	1B'-293	A	1B'-377	A
1A-23	A	1B'-78	A	1B'-216	A	1B'-303	A	1B'-378	A
1A-28	A	1B'-80	A	1B'-217	A	1B'-304	A	1B'-379	A
1A-33	A	1B'-81	A	1B'-218	A	1B'-305	A	1B'-380	A
1A-35	B	1B'-82	A	1B'-219	A	1B'-306	A	1B'-381	A
1A-36	A	1B'-83	A	1B'-221	A	1B'-322	A	1B'-382	A
1A-37	A	1B'-89	A	1B'-222	A	1B'-334	A	1B'-383	A
1A-38	B	1B'-95	A	1B'-223	A	1B'-335	A	1B'-384	A
1A-46	A	1B'-98	A	1B'-224	A	1B'-336	A	1B'-385	A
1A-49	A	1B'-100	A	1B'-225	A	1B'-337	A	1B'-386	A
1A-50	A	1B'-107	B	1B'-226	A	1B'-338	A	1B'-387	A
1A-51	A	1B'-123	A	1B'-227	A	1B'-339	A	1B'-389	A
1A-52	A	1B'-134	A	1B'-228	A	1B'-340	A	1B'-391	A
1A-53	A	1B'-135	A	1B'-229	A	1B'-341	A	1B'-392	A
1A-56	A	1B'-136	A	1B'-230	A	1B'-342	A	1B'-393	A
1B'-1	A	1B'-137	A	1B'-231	A	1B'-343	A	1B'-394	A
1B'-2	A	1B'-138	A	1B'-232	A	1B'-344	A	1B'-395	A
1B'-3	A	1B'-139	A	1B'-233	A	1B'-345	A	1B'-396	A
1B'-4	A	1B'-140	A	1B'-235	A	1B'-346	A	1B'-397	A
1B'-5	A	1B'-141	A	1B'-236	A	1B'-347	A	1B'-398	A
1B'-9	A	1B'-164	A	1B'-237	A	1B'-348	A	1B'-399	A
1B'-10	A	1B'-168	A	1B'-238	A	1B'-350	A	1B'-400	A
1B'-11	A	1B'-169	A	1B'-239	B	1B'-351	A	1B'-401	A
1B'-12	A	1B'-174	A	1B'-240	A	1B'-352	A	1B'-402	A
1B'-13	A	1B'-175	A	1B'-241	A	1B'-353	A	1B'-403	A
1B'-14	A	1B'-176	A	1B'-242	A	1B'-354	A	1B''-1	A
1B'-15	A	1B'-178	A	1B'-243	A	1B'-355	A	1B''-2	A
1B'-16	A	1B'-179	A	1B'-244	A	1B'-356	A	1B''-13	A
1B'-17	A	1B'-185	A	1B'-245	A	1B'-357	A	1B''-20	A
1B'-32	A	1B'-188	A	1B'-246	A	1B'-358	A	1B''-37	A
1B'-35	A	1B'-190	A	1B'-248	A	1B'-359	A	1B''-38	A
1B'-38	A	1B'-192	A	1B'-249	A	1B'-360	A	無処理	D
1B'-39	A	1B'-195	A	1B'-250	A	1B'-361	A		

(2) コナガに対する効力試験

実施例5に準じて調製した表2及び5に示す化合物(1)の各水和剤を界面活性剤(0.01%)を含む水で300ppmに希釈し、これらの各薬液中にキャベツ葉片(5×5cm)を30秒間浸漬し、各プラスチックカップに一枚ずつ入れて風乾した。

次に、これらのカップ内に各々10頭のコナガ(3齢幼虫)を放って蓋をし、25℃の定温室に放置し、2日後に各カップの生死虫数を数えて死虫率を求めた。

殺虫効果の評価の結果を、前記の(1)に記載した4段階の評価方法で表8に示す。

表 8

化合物	効 果	化合物	効 果
1A-1	A	1A-23	A
1A-2	A	1A-24	B
1A-3	A	1A-26	A
1A-4	A	1A-28	A
1A-5	A	1A-29	A
1A-6	A	1A-33	A
1A-7	A	1A-35	A
1A-8	A	1A-36	A
1A-9	A	1A-37	A
1A-10	A	1A-38	A
1A-12	A	1A-46	A
1A-13	A	1A-49	A
1A-14	A	1A-50	A
1A-16	A	1A-51	A
1A-17	A	1A-52	A
1A-20	A	1A-53	A
1A-22	A	1A-56	A

表 8 (続き)

化合物	効果	化合物	効果	化合物	効果	化合物	効果	化合物	効果
1B'-1	A	1B'-98	A	1B'-216	A	1B'-286	A	1B'-375	A
1B'-2	A	1B'-100	A	1B'-219	A	1B'-293	A	1B'-376	A
1B'-3	A	1B'-107	A	1B'-220	A	1B'-303	A	1B'-377	A
1B'-4	A	1B'-123	A	1B'-221	A	1B'-304	A	1B'-378	A
1B'-5	A	1B'-135	A	1B'-222	A	1B'-305	A	1B'-379	A
1B'-6	A	1B'-136	A	1B'-223	A	1B'-306	A	1B'-380	A
1B'-7	A	1B'-137	A	1B'-224	A	1B'-321	A	1B'-381	A
1B'-8	B	1B'-138	A	1B'-225	A	1B'-322	A	1B'-382	A
1B'-9	B	1B'-139	A	1B'-226	A	1B'-334	A	1B'-383	A
1B'-10	A	1B'-140	A	1B'-227	A	1B'-335	A	1B'-384	A
1B'-11	A	1B'-141	A	1B'-228	A	1B'-336	A	1B'-386	A
1B'-12	A	1B'-147	B	1B'-229	A	1B'-337	A	1B'-387	A
1B'-13	B	1B'-168	A	1B'-230	A	1B'-338	A	1B'-390	A
1B'-14	A	1B'-169	A	1B'-231	A	1B'-339	A	1B'-391	A
1B'-15	B	1B'-171	A	1B'-232	A	1B'-340	A	1B'-392	A
1B'-16	A	1B'-172	A	1B'-233	A	1B'-341	A	1B'-393	A
1B'-17	A	1B'-174	A	1B'-235	A	1B'-342	A	1B'-394	A
1B'-28	A	1B'-175	A	1B'-236	A	1B'-343	A	1B'-395	A
1B'-29	A	1B'-176	A	1B'-237	A	1B'-344	A	1B'-396	A
1B'-32	A	1B'-178	A	1B'-238	A	1B'-345	A	1B'-397	A
1B'-35	A	1B'-179	A	1B'-239	A	1B'-346	A	1B'-398	A
1B'-38	A	1B'-180	A	1B'-240	A	1B'-347	A	1B'-399	A
1B'-39	A	1B'-185	A	1B'-241	A	1B'-348	A	1B'-400	A
1B'-40	A	1B'-186	A	1B'-242	A	1B'-350	A	1B'-401	A
1B'-41	A	1B'-187	A	1B'-243	A	1B'-351	A	1B'-403	A
1B'-42	A	1B'-188	A	1B'-244	A	1B'-352	A	1B''-2	A
1B'-43	A	1B'-190	A	1B'-245	A	1B'-353	A	1B''-13	A
1B'-45	A	1B'-192	A	1B'-246	A	1B'-354	A	1B''-20	A
1B'-46	A	1B'-195	A	1B'-247	A	1B'-355	A	1B''-37	A
1B'-47	A	1B'-196	A	1B'-248	A	1B'-356	A	1B''-38	A
1B'-48	A	1B'-199	A	1B'-249	A	1B'-357	A	無処理	D
1B'-52	A	1B'-200	A	1B'-250	A	1B'-358	A		
1B'-53	A	1B'-201	A	1B'-251	A	1B'-359	A		
1B'-55	A	1B'-202	A	1B'-252	A	1B'-360	A		
1B'-58	A	1B'-203	A	1B'-253	A	1B'-361	A		
1B'-63	A	1B'-204	A	1B'-254	A	1B'-362	A		
1B'-64	A	1B'-205	A	1B'-255	A	1B'-365	A		
1B'-68	A	1B'-206	A	1B'-261	A	1B'-366	A		
1B'-73	A	1B'-207	A	1B'-262	A	1B'-367	A		
1B'-75	A	1B'-208	A	1B'-266	A	1B'-368	A		
1B'-78	A	1B'-209	A	1B'-273	A	1B'-369	A		
1B'-81	A	1B'-210	A	1B'-275	A	1B'-370	A		
1B'-82	A	1B'-211	A	1B'-281	A	1B'-371	A		
1B'-83	A	1B'-212	A	1B'-283	A	1B'-372	A		
1B'-89	A	1B'-213	B	1B'-284	A	1B'-373	A		
1B'-95	A	1B'-214	A	1B'-285	A	1B'-374	A		

(3) ヒラタコクヌストモドキに対する効力試験

実施例5に準じて調製した表2に示す化合物(1)の各水和剤を界面活性剤(0.01%)を含む水で各々500ppmに希釈し、これらの各薬液1mlを各プラスチックカップ内の濾紙(直径7.8cm, 1枚)にまんべんなく滴下して風乾した。

これらのカップ内に各々10頭のヒラタコクヌストモドキ(成虫)を放って蓋をし、25℃の定温室に放置し、5日後に各カップ内の生死虫数を数えて殺虫率を求めた。

殺虫効果の評価の結果を、前記の(1)に記載した4段階の評価方法で表9に示す。

表 9

化 合 物	効 果
1A-4	A
1A-7	A
1A-13	B
1A-19	A
1A-20	A
1A-46	A
1A-52	B

(4) トビイロウンカに対する効力試験

実施例5に準じて調製した表5に示す化合物(1B)の各水和剤を界面活性剤(0.01%)を含む水で300ppmに希釈し、これらの各薬液中にイネ稚苗を30秒間浸漬し、風乾後、それぞれのガラス円筒に挿入した。

次に、これらのガラス円筒に各々10頭のトビイロウンカ(4齢幼虫)を放ち、多孔質の蓋をし、25℃の定温室に放置し、4日後に各ガラス円筒の生死虫数を数えて死虫率を求めた。

殺虫効果の評価の結果を、前記の(1)に記載した4段階の評価方法で表10に示す。

表 10

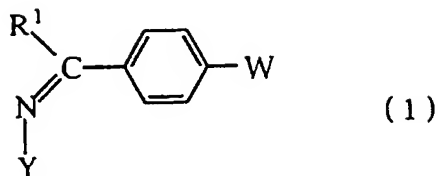
化合物	効果	化合物	効果	化合物	効果	化合物	効果
1B'-1	B	1B'-141	A	1B'-231	A	1B'-353	A
1B'-2	A	1B'-169	A	1B'-232	A	1B'-354	A
1B'-3	A	1B'-172	B	1B'-233	A	1B'-355	A
1B'-4	A	1B'-174	B	1B'-235	A	1B'-356	A
1B'-5	A	1B'-175	B	1B'-236	A	1B'-357	B
1B'-8	B	1B'-176	A	1B'-237	A	1B'-358	A
1B'-9	B	1B'-179	A	1B'-238	A	1B'-359	A
1B'-10	A	1B'-188	A	1B'-241	A	1B'-360	A
1B'-11	B	1B'-190	A	1B'-242	A	1B'-361	A
1B'-12	B	1B'-192	A	1B'-243	A	1B'-362	A
1B'-13	A	1B'-196	A	1B'-244	A	1B'-365	A
1B'-14	B	1B'-199	A	1B'-245	A	1B'-366	A
1B'-28	A	1B'-202	B	1B'-246	A	1B'-367	A
1B'-29	B	1B'-204	A	1B'-250	A	1B'-368	A
1B'-32	B	1B'-205	A	1B'-252	A	1B'-369	A
1B'-38	A	1B'-206	A	1B'-253	A	1B'-370	A
1B'-39	A	1B'-207	A	1B'-254	A	1B'-371	A
1B'-40	A	1B'-208	A	1B'-261	A	1B'-372	A
1B'-41	A	1B'-209	A	1B'-262	A	1B'-373	A
1B'-42	A	1B'-210	A	1B'-266	A	1B'-376	A
1B'-43	A	1B'-211	A	1B'-273	A	1B'-377	A
1B'-45	A	1B'-214	A	1B'-275	A	1B'-378	A
1B'-46	A	1B'-215	A	1B'-281	A	1B'-380	A
1B'-47	A	1B'-216	A	1B'-283	A	1B'-381	A
1B'-64	B	1B'-217	A	1B'-284	A	1B'-384	B
1B'-75	A	1B'-218	A	1B'-285	A	1B'-387	A
1B'-81	A	1B'-219	A	1B'-293	A	1B'-391	B
1B'-82	A	1B'-220	A	1B'-336	B	1B'-397	A
1B'-95	A	1B'-221	A	1B'-338	A	1B'-398	A
1B'-98	A	1B'-222	A	1B'-339	A	1B'-399	A
1B'-100	B	1B'-223	A	1B'-342	A	1B'-400	A
1B'-107	B	1B'-224	A	1B'-343	A	1B'-403	A
1B'-135	A	1B'-225	A	1B'-344	A	1B''-2	B
1B'-136	A	1B'-226	A	1B'-345	A	1B''-20	A
1B'-137	A	1B'-227	A	1B'-346	A	1B''-37	A
1B'-138	A	1B'-228	A	1B'-347	A	1B''-38	A
1B'-139	A	1B'-229	A	1B'-348	B	無処理	D
1B'-140	A	1B'-230	A	1B'-352	A		

産業上の利用可能性

本発明の新規なベンジリデンヒドラジン化合物は、優れた農園芸用の有害生物防除効果を有するものである。

請 求 の 範 囲

1. 次式 (1) :



式中、Wは $-O-Q$ ；ここでQは無置換、又はハロゲン原子、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のハロアルコキシ基もしくは炭素原子数1～8のアルキルアミノ基から選択される少なくとも一の置換基で置換された窒素原子数1～3の6員環を表わす；又は

$-CR^2R^3(XR^4)$ を表わし；ここで R^2 は水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基、シアノ基又はハロゲン原子を表わし； R^3 は水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基又はハロゲン原子を表わし； R^4 は水素原子、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、無置換又は置換基としてハロゲン原子もしくは炭素原子数1～4のアルキル基を有するフェニル基、ベンジル基、フェネチル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数2～6のハロアルケニル基、炭素原子数1～4のアルキルスルホニル基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニル基、シアノ基、 A^1COOR^{10} 、 A^1OR^{10} 、 COA^1OR^{10} 、 $CSOR^{10}$ 又はシアノアルキル基を表わす；ここで

A^1 は炭素原子数1～4のアルキレン基を表わし；

R^{10} は炭素原子数1～4のアルキル基を表わす；

R^1 は、Wが $-O-Q$ のとき、無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数1～4のアルキル基もしくはピリミジニルオキシ基を有するフェニル基を表わし；

Wが $-CR^2R^3(XR^4)$ のとき、無置換又は置換基としてハロゲン原

子、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、ニトロ基、シアノ基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数1～4のハロアルコキシ基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニルオキシ基もしくは炭素原子数1～4のアルキルスルホニルオキシ基を有するフェニル基、炭素原子数1～8のアルキル基又は炭素原子数1～4のハロアルキル基を表わす；

Yは、Wが $-O-Q$ のとき、 $-NR^5R^6$ を表わし；ここで

R^5 は、水素原子を表わし；

R^6 は、水素原子、炭素原子数2～5のアルコキシカルボニル基又は炭素原子数2～5のアシル基を表わし；又は、

R^5 と R^6 とはNと共に、 $-N=CR^7NR^8R^9$ を形成してもよく、ここで R^7 、 R^8 及び R^9 は、それぞれ独立して炭素原子数1～4のアルキル基を表わす；

Wが $-CR^2R^3(XR^4)$ のとき、 $-NR^{5'}R^{6'}$ 、 $-N=CR^{7'}NR^{8'}R^{9'}$ 又は $R^{7'}$ と $R^{8'}$ とが連結して4～8員環を形成した $-N=CR^{7'}NR^{8'}R^{9'}$ を表わす；ここで、

$R^{5'}$ は水素原子、ホルミル基、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、 $COOR^{11}$ 、 COR^{12} 、 SO_2R^{13} 、 SO_2NHR^{10} 、 SO_2NHCH_2Ph 、 $SO_2NR^{10'}R^{10'}$ 、 $CONHR^{14}$ 、 $CSNHR^{15}$ 、 A^1COOR^{10} 、 COA^2R^{16} 、 $CONR^{10'}R^{10'}$ 、 $CSSR^{10}$ 又は A^1OR^{10} を表わし；

$R^{6'}$ は水素原子、ホルミル基、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、 $COOR^{17}$ 、 COR^{18} 、 SO_2R^{13} 、 COA^1R^{19} 、 $COCOOR^{10}$ 、 $SCR^{20}R^{20}R^{20}$ 、 $SNR^{21}R^{21'}$ 、 A^1OR^{21} 、 $CH_2OA^1OR^{10}$ 、 $SNR^{10}COOR^{21}$ 、 $SNR^{10}A^1COOR^{10'}$ 、 A^1SR^{15} 又はベンジル基を表わし；

$R^{5'}$ と $R^{6'}$ とはNと共に連結して4～8員環を形成することができ；

$R^{7'}$ は水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基又はフェニル基を表わ

し；

R^8 は水素原子又は炭素原子数 1～4 のアルキル基を表わし；

R^9 は水素原子、ホルミル基、炭素原子数 1～4 のアルキル基、炭素原子数 2～5 のアルキニル基、 $CO R^{10}$ 又はフェニル基を表わし；

A^1 及び R^{10} は前記と同義であり；

A^2 は炭素原子数 1～10 のアルキレン基を表わし；

Ph はフェニル基を表わし；

R^{10} は炭素原子数 1～4 のアルキル基を表わし；

R^{11} は炭素原子数 1～8 のアルキル基、フェニル基、ベンジル基又は炭素原子数 3～5 のアルケニル基を表わし；

R^{12} は炭素原子数 1～8 のアルキル基、炭素原子数 1～4 のハロアルキル基、炭素原子数 3～8 のシクロアルキル基、無置換もしくはハロゲン原子、炭素原子数 1～4 のハロアルキル基、炭素原子数 1～4 のアルキル基、水酸基、炭素原子数 1～4 のアルコキシ基を置換基として有するフェニル基又は無置換もしくはハロゲン原子を置換基として有するピリジル基を表わし；

R^{13} は炭素原子数 1～4 のアルキル基又は炭素原子数 1～4 のハロアルキル基を表わし；

R^{14} は無置換もしくは炭素原子数 1～4 のハロアルキル基を置換基として有するフェニル基、炭素原子数 1～8 のアルキル基又はフェニルスルホニル基を表わし；

R^{15} はフェニル基又は炭素原子数 1～4 のアルキル基を表わし；

R^{16} は炭素原子数 1～4 のアルキル基、炭素原子数 1～4 のアルコキシ基、炭素原子数 1～4 のアルキルチオ基、炭素原子数 2～4 のアルキルカルボニルオキシ基、ハロゲン原子、イミダゾール基、炭素原子数 2～5 のアルキルカルボニルアミノ基又はピリジル基を表わし；

R^{17} は炭素原子数 1～8 のアルキル基、フェニル基、ベンジル基又は炭素原子数 2～5 のアルケニル基を表わし；

R^{18} は炭素原子数 1～8 のアルキル基、炭素原子数 3～8 のシクロアル

キル基、フェニル基、炭素原子数2～5のアルケニル基又は無置換もしくはハロゲン原子を置換基として有するピリジル基を表わし；

R^{10} は炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、 $COOR^{10}$ を表わし；

R^{20} はハロゲン原子を表わし；

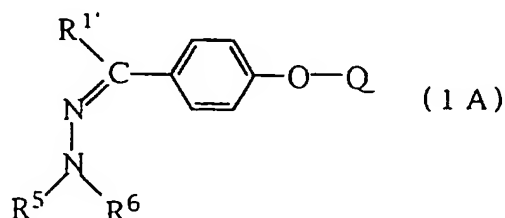
R^{21} 及び $R^{21'}$ は炭素原子数1～8のアルキル基を表わし；

XはS、SO、 SO_2 、O又は NR^{22} を表わす；ここで、

R^{22} は水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数2～5のアルキルカルボニル基又はホルミル基を表わす；

で示されることを特徴とするベンジリデンヒドラジン化合物。

2. 式(1)の化合物が次式(1A)：

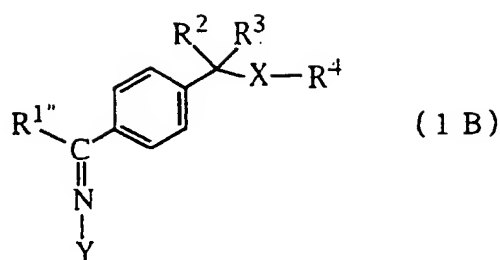


式中、 $R^{1'}$ 、 R^5 、 R^6 及びQは前記と同義である；

で示されるものである請求の範囲第1項記載の化合物。

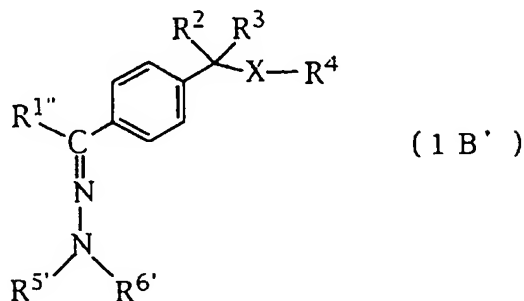
3. $R^{1'}$ がフェニル基又は置換基としてハロゲン原子を有するフェニル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が炭素原子数2～5のアルコシカルボニル基であるか、 R^5 と R^6 とがNと共に $-N=C(CH_3)N(CH_3)_2$ を形成し、Qがピリミジニル基、ピリジル基又はトリアジニル基である請求の範囲第2項記載の化合物。

4. 式(1)の化合物が次式(1B)：



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 X 及び Y は前記と同義である；
で示されるものである請求の範囲第1項記載の化合物。

5. 式(1B)の化合物が次式(1B')：

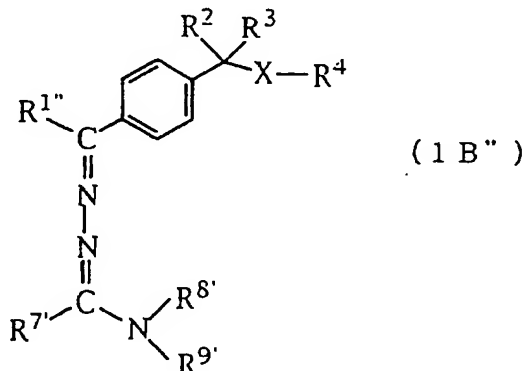


式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 $R^{5'} \sim R^{6'}$ 及び X は前記と同義である；
で示されるものである請求の範囲第4項記載の化合物。

6. $R^{1''}$ がフェニル基又は炭素原子数1～8のアルキル基であり； R^2 が水素原子又は炭素原子数1～4のアルキル基であり； R^3 が水素原子又は炭素原子数1～4のアルキル基であり； R^4 が炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、フェニル基、ベンジル基、フェネチル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数2～6のハロアルケニル基、炭素原子数1～4のアルキルスルホニル基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニル基、シアノ基、 A^1COOR^{10} 、水素原子、 A^1OR^{10} 、 COA^1OR^{10} 又はシアノアルキル基であり； $R^{5'}$ は水素原子、ホルミル基、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、 $COOR^{11}$ 、 COR^{12} 、 SO_2R^{13} 、 SO_2NH

R^{10} 、 $SO_2 NHCH_2 Ph$ 、 $SO_2 NR^{10}R^{10'}$ 、 $CONHR^{14}$ 、 $CSNH$
 R^{15} 、 $A^1 COOR^{10}$ 、 $COA^2 R^{16}$ 、 $CONR^{10}R^{10'}$ 、 $CSSR^{10}$ 又は A^1
 OR^{10} であり； $R^{6'}$ は水素原子、ホルミル基、炭素原子数1～8のアルキル基、
炭素原子数1～4のハロアルキル基、 $COOR^{17}$ 、 COR^{18} 、 $SO_2 R^{13}$ 、 CO
 $A^1 R^{19}$ 、 $COCOOR^{10}$ 、 $SCR^{20}R^{20}R^{20}$ 、 $SNR^{21}R^{21'}$ 、 $A^1 OR^{21}$ 、
 $CH_2 OA^1 OR^{10}$ 、 $SNR^{10}COOR^{21}$ 、 $SNR^{10}A^1 COOR^{10'}$ 、 $A^1 S$
 R^{15} 又はベンジル基であり； $R^{5'}$ と $R^{6'}$ とはNと共に連結して4～8員環を形成
することができ；ここで A^1 、 A^2 、 $R^{10} \sim R^{21'}$ は前記と同義であり；そして
XがS、SO又は SO_2 である請求の範囲第5項記載の化合物。

7. 式(1B)の化合物が次式(1B'')：

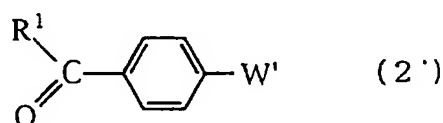


式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 $R^{7'} \sim R^{9'}$ 及びXは前記と同義である；
で示されるものである請求の範囲第4項記載の化合物。

8. $R^{1''}$ がフェニル基又は置換基としてハロゲン原子を有するフェニル基であ
り； R^2 が水素原子又は炭素原子数1～4のアルキル基であり； R^3 が水素原子
又は炭素原子数1～4のアルキル基であり； R^4 が炭素原子数1～6のアルキル
基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、
フェニル基又は炭素原子数1～4のハロアルキル基であり； $R^{5'}$ は水素原子、
ホルミル基、炭素原子数1～8のアルキル基、 $COOR^{11}$ 、 COR^{12} 、 SO_2
 R^{13} 、 $SO_2 NHR^{10}$ 、 $SO_2 NHCH_2 Ph$ 、 $SO_2 NR^{10}R^{10'}$ 、 $CONH$
 R^{14} 、 $CSNHR^{15}$ 、 $A^1 COOR^{10}$ 、 $COA^2 R^{16}$ 、 $CONR^{10}R^{10'}$ 、CS

SR^{10} 又は $A^1 OR^{10}$ であり； $R^{6'}$ は水素原子、ホルミル基、炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、 $COOR^{17}$ 、 COR^{18} 、 $SO_2 R^{13}$ 、 $COA^1 R^{19}$ 、 $COCOOR^{10}$ 、 $SCR^{20}R^{20}R^{20}$ 、 $SNR^{21}R^{21'}$ 、 $A^1 OR^{21}$ 、 $CH_2 OA^1 OR^{10}$ 、 $SNR^{10}COOR^{21}$ 、 $SNR^{10}A^1 COOR^{10'}$ 、 $A^1 SR^{15}$ 又はベンジル基であり；ここで A^1 、 A^2 、 $R^{10} \sim R^{21'}$ は前記と同義であり；そしてXがS、SO又は SO_2 である請求の範囲第7項記載の化合物。

9. 次式(2'):



式中、 W' は $-O-Q'$ 又は $-CR^2 R^3 (XR^{4'})$ を表わし；ここで

Q' はピリミジニル基、置換基として炭素原子数1～4のハロアルキル基を有するピリジニル基又は置換基として炭素原子数1～4のアルコキシ基と炭素原子数1～8のアルキルアミノ基とを有するトリアジニル基を表わし；

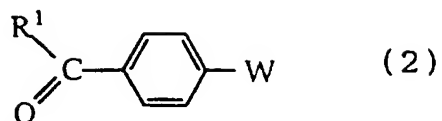
$R^{4'}$ は炭素原子数1～8のアルキル基、炭素原子数2～5のアルケニル基、炭素原子数3～8のシクロアルキル基、炭素原子数2～5のアルキニル基、無置換又は置換基としてハロゲン原子もしくは炭素原子数1～4のアルキル基を有するフェニル基、ベンジル基、フェネチル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、炭素原子数2～6のハロアルケニル基、炭素原子数1～4のアルキルスルホニル基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニル基、シアノ基、 $A^1 COOR^{10}$ 、 $A^1 OR^{10}$ 、 $COA^1 OR^{10}$ 、 $CSOR^{10}$ 又はシアノアルキル基を表わし；

$R^1 \sim R^3$ 、 R^{10} 、 A^1 及びXは請求の範囲第1項と同義である；

で示される化合物。

10. 次式(2)：

162



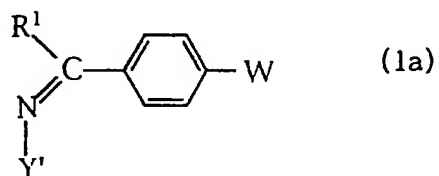
式中、 R^1 及び W は、請求の範囲第 1 項と同義である；
で示される化合物と

次式 (3) :



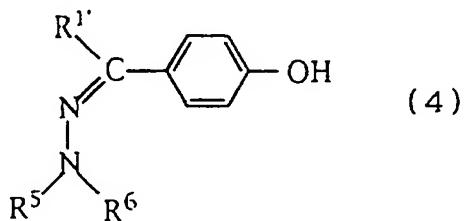
式中、 Y' は W が $-O-Q$ のとき、 $-NR^5R^6$ を表わし、 W が $-CR^2R^3$ (XR^4) のとき、 $-NR^{5'}R^{6'}$ を表わす；ここで、 R^5 、 R^6 、 $R^{5'}$ 及び $R^{6'}$ は請求の範囲第 1 項と同義である；
で示される化合物とを反応させることを特徴とする

次式 (1a) :



式中、 R^1 、 Y' 及び W は、前記と同義である；
で示される化合物の製法。

11. 次式 (4) :



式中、 $R^{1'}$ は、無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数 1～4 のアルキル基もしくはピリミジニルオキシ基を有するフェニル基を表わし；
 R^5 及び R^6 は、請求の範囲第 1 項と同義である；
で示される化合物と

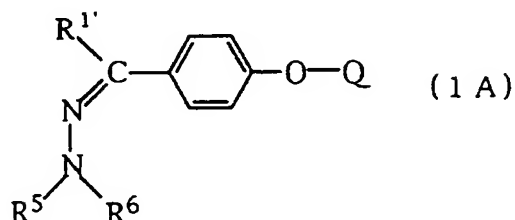
次式 (5) :

163



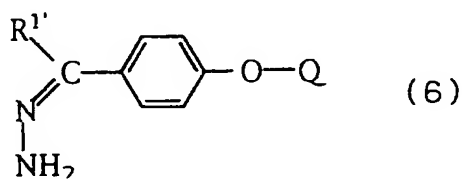
式中、Qは、請求の範囲第1項と同義であり；Zは脱離基を表わす；
で示される化合物とを反応させることを特徴とする、

次式(1A)：



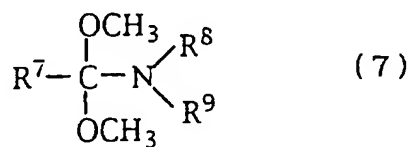
式中、 $R^{1'}$ 、 R^5 、 R^6 及びQは、前記と同義である；
で示されるヘテロ環オキシベンジリデンヒドラジン化合物の製法。

12. 次式(6)：



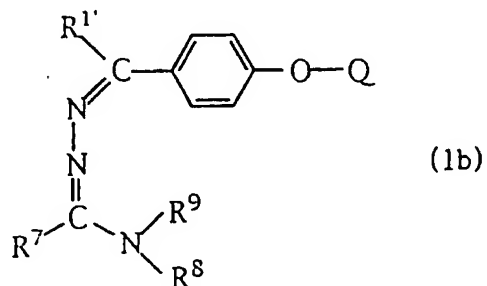
式中、 $R^{1'}$ 及びQは、請求の範囲第1項と同義である；
で示される化合物と

次式(7)：



式中、 R^7 、 R^8 及び R^9 は、請求の範囲第1項と同義である；
で示される化合物とを反応させることを特徴とする、

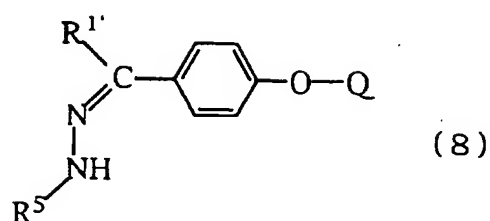
次式(1b)：



式中、 $R^{1'}$ 、 R^7 、 R^8 、 R^9 及びQは、前記と同義である；

で示されるヘテロ環オキシベンジリデンヒドラジン化合物の製法。

13. 次式(8) :



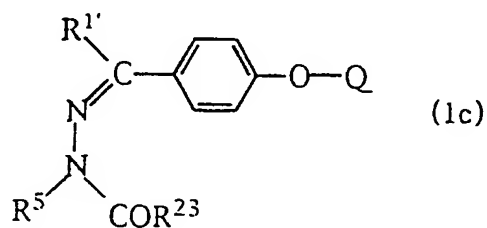
式中、 $R^{1'}$ 、 R^5 及び Q は、請求の範囲第1項と同義である；
で示される化合物と

次式(9) :



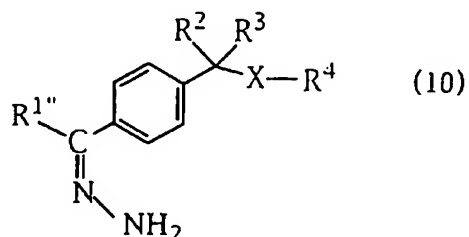
式中、 R^{23} は、炭素原子数1～4のアルコキシ基又は炭素原子数1～4のアルキル基を表し； Z' は、脱離基を表わす；
で示される化合物とを反応させることを特徴とする、

次式(1c) :



式中、 $R^{1'}$ 、 R^5 、 Q 及び R^{23} は、前記と同義である；
で示されるヘテロ環オキシベンジリデンヒドラジン化合物の製法。

14. 次式(10) :



式中、 $R^{1'}$ は無置換又は置換基としてハロゲン原子、炭素原子数1～4のアルキル基、炭素原子数1～4のハロアルキル基、ニトロ基、シアノ基、炭素原子数1～4のアルコキシ基、炭素原子数1～4のアルキルチオ基、炭素原子数1～4のハロアルコキシ基、炭素原子数1～4のハロアルキルスルホニルオキシ基もしくは炭素原子数1～4のアルキルスルホニルオキシ基を有するフェニル基、炭素原子数1～8のアルキル基又は炭素原子数1～4のハロアルキル基を表わし； $R^2 \sim R^4$ 及びXは、請求の範囲第1項と同義である；

で示される化合物と

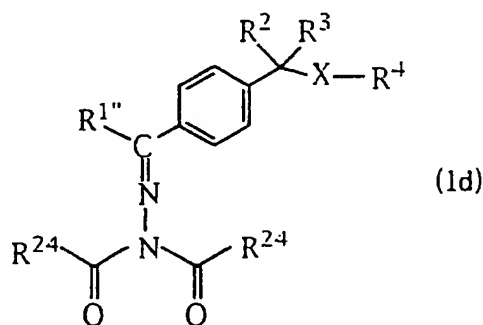
次式(11)：



式中、 R^{24} は、 R^{10} 、 OR^{11} 、 NHR^{14} 又は $NR^{10}R^{10'}$ を表わし；Zは、ハロゲン原子、 $OCOR^{13}$ 、 OR^{10} 、 OH を表わす；なお、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{13} 及び R^{14} は、前記と同義である；

で示される化合物とを反応させることを特徴とする

次式(1d)：

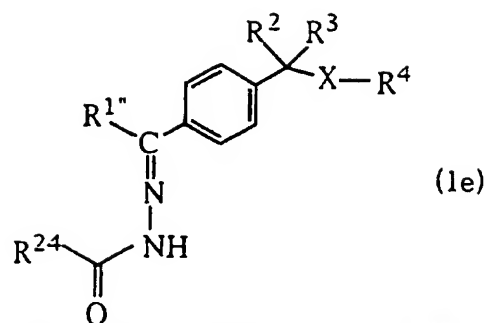


式中、 $R^{1''} \sim R^4$ 、X及び R^{24} は、前記と同義である；

で示される化合物) 及び

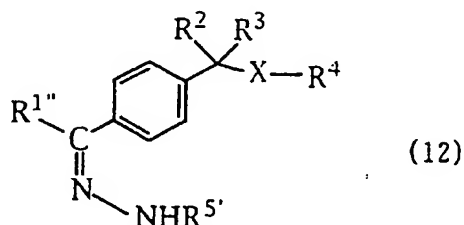
次式(1e)：

166



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 X 及び R^{24} は、前記と同義である；
で示される化合物の製法。

15. 次式 (12) :



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 $R^{5'}$ 及び X は、請求の範囲第1項と同義である；

で示される化合物と

次式 (13) :

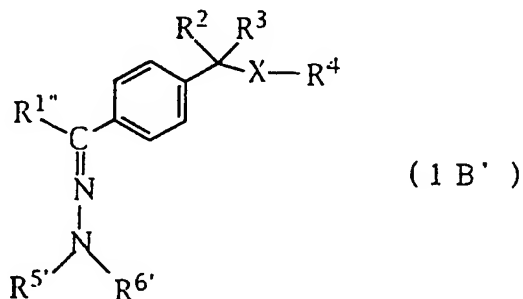


式中、 $R^{6'}$ は、請求の範囲第1項と同義であり； G は、ハロゲン原子又は

$OCOR^{13}$ を表わす；ここで、 R^{13} は請求の範囲第1項と同義である；

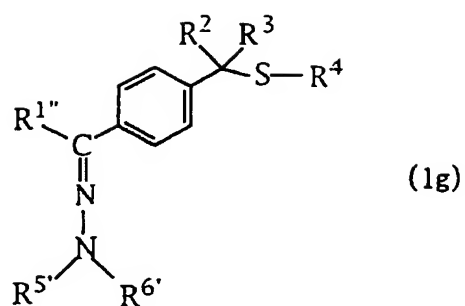
で示される化合物とを反応させることを特徴とする

次式 (1B') :



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 、 $R^{5'} \sim R^{6'}$ 及び X は、前記と同義である；
で示される化合物の製法。

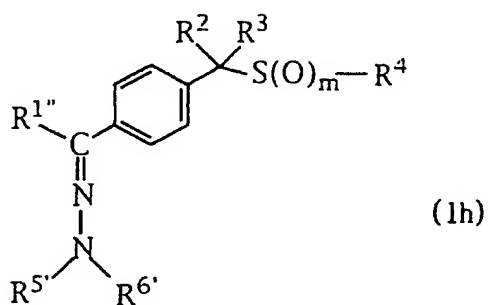
16. 次式 (1g) :



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 及び $R^{5'} \sim R^{6'}$ は、請求の範囲第1項と同義である；

で示される化合物と酸化剤とを反応させることを特徴とする

次式 (1h) :



式中、 $R^{1''}$ 、 $R^2 \sim R^4$ 及び $R^{5'} \sim R^{6'}$ は、前記と同義であり； m は、1又は2である；

で示される化合物の製法。

17. 請求の範囲第1項記載の化合物(1)を有効成分とする農園芸用の有害生物防除剤。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP96/02698

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl⁶ C07C225/16, C07C281/04, C07C317/24, C07C317/28,
C07C323/22, C07C323/23, C07C323/45, C07D207/50, C07D213/643,
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl⁶ C07C225/16, C07C281/04, C07C317/24, C07C317/28,
C07C323/22, C07C323/23, C07C323/45, C07D207/50, C07D213/643,

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAS ONLINE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 6-73022, A (Kumiai Chemical Industry Co., Ltd., Ihara Chemical Industry Co., Ltd.), March 15, 1994 (15. 03. 94), Page 8, compounds No. 52 (Family: none)	9
A	US, 4616087, A (The Dow Chemical Co.), October 7, 1986 (07. 10. 86), Column 14, lines 11 to 12 (Family: none)	9
A	JP, 63-502511 (Rhone-Poulenc Nederland B.V.), September 22, 1988 (22. 09. 88), Page 93, lower left column; page 97, upper left column & WO, 8704321, A & AU, 8770316, A & PT, 84183, A & EP, 258391, A & DK, 8704961, A & BR, 8705356, A & FI, 8704111, A & DD, 254318, A & HU, T45858, A & ZA, 8700480, A & ES, 2004071, A	9

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

December 17, 1996 (17. 12. 96)

Date of mailing of the international search report

December 25, 1996 (25. 12. 96)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP96/02698

A. (Continuation) CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07D233/64, C07D239/34, C07D239/38, C07D251/46, A01N33/26,
A01N43/40, A01N43/50, A01N43/54, A01N43/64, A01N47/12,
A01N47/28

B. (Continuation) FIELDS SEARCHED

C07D233/64, C07D239/34, C07D239/38, C07D251/46, A01N33/26,
A01N43/40, A01N43/50, A01N43/54, A01N43/64, A01N47/12,
A01N47/28

国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 96/02698

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁸ C07C225/16, C07C281/04, C07C317/24, C07C317/28, C07C323/22, C07C323/23, C07C323/45, C07D207/50, C07D213/643, C07D233/64, C07D239/34, C07D239/38, C07D251/46, A01N33/26, A01N43/40, A01N43/50, A01N43/54, A01N43/64, A01N47/12, A01N47/28

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁸ C07C225/16, C07C281/04, C07C317/24, C07C317/28, C07C323/22, C07C323/23, C07C323/45, C07D207/50, C07D213/643, C07D233/64, C07D239/34, C07D239/38, C07D251/46, A01N33/26, A01N43/40, A01N43/50, A01N43/54, A01N43/64, A01N47/12, A01N47/28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ONLINE

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 6-73022, A (クミアイ化学工業株式会社, イハラケミカル工業株式会社) 15. 3月, 1994 (15. 03. 94) 8頁, 化合物番号 52 (ファミリーなし)	9
A	US, 4616087, A (The Dow Chemical Company) 7. 10月, 1986 (07. 10. 86) 第14欄 11-12行 (ファミリーなし)	9
A	JP, 63-502511 (ロ-ヌ-ブ'-ラン-ネ-ド'-ル-ント'-ベ'-'-ベ'-) 22. 9月, 1988 (22. 09. 88) 93頁左下欄, 97頁左上欄 & WO, 8704321, A & AU, 8770316, A & PT, 84183, A & EP, 258391, A & DK, 8704961, A & BR, 8705356, A & FI, 8704111, A & DD, 254318, A & HU, 745848, A & ZA, 8700480, A & ES, 2004071, A	9

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17. 12. 96

国際調査報告の発送日

25.12.96

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

脇 村 善 一

印

4H

7457

電話番号 03-3581-1101 内線 3443